PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number:

2003-292583

(43) Date of publication of application: 15.10.2003

(51) Int. Cl.

C08G 59/62

C08G 59/24

C08G 59/32

H01L 23/29

H01L 23/31

(21) Application number : 2002-097748

(71) Applicant: HITACHI CHEM CO LTD

(22) Date of filing:

29. 03. 2002

(72) Inventor:

TENDOU KAZUYOSHI AKAGI SEIICHI

KATAYOSE MITSUO

(54) EPOXY RESIN MOLDING MATERIAL AND ELECTRONIC PART DEVICE

(57) Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an epoxy resin molding material slightly causing chip shifts, voids and wire sweeps in a thin surface mounting type package and having excellent reflow resistance and an electronic part device having an element sealed with the epoxy resin molding material.

SOLUTION: The epoxy resin molding material consists essentially of (A) an epoxy resin, (B) a curing agent, (C) a curing accelerator and (D) an inorganic filler. The curing agent (B) contains a phenol resin represented by general formula (I) (wherein, R denotes a hydrogen atom, a substituted or an unsubstituted 1-6C alkyl group; m denotes 0 or an integer of 1-2; and n denotes 0 or an integer of 1-10). The amount of the component of the phenol resin in which n is ≥ 1 is ≤ 11 wt. %. The content of a polyfunctional phenol resin containing ≥3 phenolic hydroxy groups on the average in one molecule is <10 wt. % in the total amount of the curing agent (B).

$$\begin{array}{c|c} \begin{array}{c} \begin{array}{c} \begin{array}{c} \begin{array}{c} \begin{array}{c} \begin{array}{c} \\ \end{array} \end{array} \end{array} \end{array} \end{array} \begin{array}{c} \begin{array}{c} \begin{array}{c} \\ \end{array} \end{array} \end{array} \begin{array}{c} \begin{array}{c} \\ \end{array} \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \end{array} \end{array} \begin{array}{c} \begin{array}{c} \\ \end{array} \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \end{array} \begin{array}{c} \begin{array}{c} \\ \end{array} \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \begin{array}{c} \\ \end{array} \\ \end{array} \begin{array}{c} \\$$

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted

registration]
[Date of final disposal for application]
[Patent number]
[Date of registration]
[Number of appeal against examiner's decision of rejection]
[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]
[Date of extinction of right]

* NOTICES *

JPO and NCIPI are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2. **** shows the word which can not be translated.
- 3. In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] (A) The epoxy resin molding compound whose content of the polyfunctional phenol resin which an epoxy resin, the (B) curing agent, the (C) hardening accelerator, and the (D) inorganic bulking agent are used as an indispensable component, the (B) curing agent is shown by the following general formula (I), and the n= 1 or more amounts of components contain 11 or less % of the weight of phenol resin, and contains a phenolic hydroxyl group by three or more averages in 1 intramolecular is less than 10 % of the weight in (B) curing agent whole quantity.

[Formula 1]

$$\begin{array}{c|c}
OH & OH \\
\hline
OH & OH \\
\hline
(R)m & (R)m
\end{array}$$

$$\begin{array}{c|c}
(R)m & (R)m
\end{array}$$

(Here, R shows the alkyl group of a hydrogen atom, a permutation, or the unsubstituted carbon numbers 1-6, m shows the integer of 0, or 1-2, and n shows the integer of 0, or 1-10.)

[Claim 2] (B) The epoxy resin molding compound containing the dicyclopentadiene mold phenol resin in which a curing agent is shown by the following general formula (II) according to claim 1.

[Formula 2]

$$\begin{array}{c}
OH \\
\downarrow^{j} \\
\downarrow^{j} \\
R^{1}
\end{array}$$

$$\begin{array}{c}
OH \\
\downarrow^{j} \\
R^{2} \\
\downarrow^{m}
\end{array}$$

$$\begin{array}{c}
OH \\
\downarrow^{j} \\
R^{1}
\end{array}$$

$$\begin{array}{c}
OH \\
(R^{2})_{m}
\end{array}$$

$$\begin{array}{c}
OH \\
(R^{2})_{m}
\end{array}$$

$$\begin{array}{c}
R^{1}
\end{array}$$

$$\begin{array}{c}
(R) \\
R^{2}
\end{array}$$

(Here, R1 and R2 are chosen respectively independently of a hydrogen atom and the alkyl group of carbon numbers 1-6, and even if all m pieces are the same, they may differ.) m shows the integer of 0, or 1-6, and n shows the integer of 0, or 1-10.

[Claim 3] The epoxy resin molding compound according to claim 2 whose average of n of the dicyclopentadiene mold phenol resin shown by the general formula (II) is less than [0 or more] 0.5.

[Claim 4] (A) The epoxy resin molding compound containing the epoxy resin in which an epoxy resin is shown by the following general formula (III) according to claim 1 to 3. [Formula 3]

$$\begin{array}{c} \text{CH}_2\text{-CH-CH}_2 \\ \text{CH}_2\text{-CH-CH}_2 \\ \text{O} \\ \text{O} \\ \text{CH}_2 \\ \text{C$$

(Here, R shows the alkyl group of a hydrogen atom, a permutation, or the unsubstituted carbon numbers 1-6, and even if all m pieces are the same, it may differ.) m shows the integer of 0, or 1-2, and n shows the integer of 0, or 1-10.

[Claim 5] (A) The epoxy resin molding compound containing the epoxy resin in which an epoxy resin is shown by the following general formula (IV) according to claim 1 to 4. [Formula 4]

(Here, R1 and R2 are chosen respectively independently of a hydrogen atom and the alkyl group of carbon numbers 1-6, and even if all m pieces are the same, they may differ.) m shows the integer of 0, or 1-6, and n shows the integer of 0, or 1-10. [Claim 6] (A) The epoxy resin molding compound containing the epoxy resin in which an epoxy resin is shown by the following general formula (V) according to claim 1 to 5. [Formula 5]

(Here, R1 is chosen from the alkyl group of a hydrogen atom, a permutation, or the unsubstituted carbon numbers 1-6, and even if all are the same, it may differ.) R2 and R3 show the hydrocarbon group of a hydrogen atom, a permutation, or the unsubstituted carbon numbers 1-12, m shows the integer of 0, or 1-4, and n shows the integer of 0, or 1-5.

[Claim 7] (A) The epoxy resin molding compound according to claim 1 to 6 in which an epoxy resin contains either [at least] a sulfur atom content epoxy resin or a biphenyl mold epoxy resin.

[Claim 8] Electronic-parts equipment equipped with the component in which the closure was carried out by the epoxy resin molding compound according to claim 1 to 7.

[Translation done.]

* NOTICES *

JPO and NCIPI are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2. **** shows the word which can not be translated.
- 3. In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[Field of the Invention] This invention is excellent in a fluidity, and there are few generating of a chip shift and the amounts of wire sweeps in a thin surface mount mold package, and it relates to electronic-parts equipment equipped with the epoxy resin molding compound excellent in reflow-proof nature, and the component closed by this epoxy resin molding compound.

[0002]

[Description of the Prior Art] From the former, the epoxy resin molding compound is widely used in the field of the electronic-parts closures, such as a transistor and IC. As this reason, it is because the epoxy resin maintains balance in many properties, such as an electrical property, moisture resistance, thermal resistance, a mechanical characteristic, and an adhesive property with an insertion article. Especially the combination of polyglycidyl ether of o-cresol-form aldeyde novolac and a phenol novolak curing agent is excellent in these balance, and has become the mainstream of the base resin of the molding material for the closures. In recent years, the package of the pin inserting type of the former [equipment / electronic-parts] to a surface mount mold is becoming in use with high-density-assembly-izing to the printed wired board of electronic parts. In order that IC of a surface mount mold, LSI, etc. may make packaging density high and may make mounting height low, it is a thin shape and a small package, and the occupied volume to the package of a component becomes large, and the thickness of a package is becoming very thin. Especially, with a package with very thin thickness, such as TSOP (Thin Small Outline Package) and TQFP (Thin Quad Flat Package), when the fluidity of the epoxy resin molding compound for the closures is low, a chip shift will occur at the time of shaping, a void will occur by these shifts, or the thick balance of an up-and-down epoxy resin molding compound will collapse, and it will become the factor which reduces reflow-proof nature. Moreover, since the number of pins per package increases with increase of packaging density, the gold streak used for connection of a component and a lead inside a package is also long, and those pitches are also becoming narrow. case [therefore,] the fluidity of an epoxy molding material is low -deformation (wire sweep) of a gold streak -- causing -- a gold streak -- it will become the factor of the malfunction by contact, an open circuit, etc. of comrades. Then, although examination which raises the fluidity of an epoxy resin molding compound is performed, it has not resulted in sufficient solution. [0003]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] This invention was made in view of this situation, is excellent in a fluidity, and there tends to be little generating of the chip shift in a thin surface mount mold package, a void, and a wire sweep, and it tends to offer electronic-parts equipment equipped with the epoxy resin molding compound excellent in reflow-proof nature, and the component closed by this epoxy resin molding compound.

[0004]

[Means for Solving the Problem] In order to solve the above-mentioned technical problem, as a result of repeating examination wholeheartedly, this invention persons find out

that the above-mentioned purpose can be attained by the epoxy resin molding compound which blended the curing agent of specific structure, and came to complete this invention.

[0005] Namely, this invention (1) The (A) epoxy resin, the (B) curing agent, (C) A hardening accelerator and the (D) inorganic bulking agent are used as an indispensable component. The (B) curing agent It is shown by the following general formula (I) and the n= 1 or more amounts of components contain 11 or less % of the weight of phenol resin. And the content of the polyfunctional phenol resin which contains a phenolic hydroxyl group by three or more averages in 1 intramolecular is related with the epoxy resin molding compound which is less than 10 % of the weight in (B) curing agent whole quantity.

[Formula 6]

$$OH$$

 OH
 OH

However, R shows the alkyl group of a hydrogen atom, a permutation, or the unsubstituted carbon numbers 1-6 by the general formula (I), m shows the integer of 0, or 1-2, and n shows the integer of 0, or 1-10 by it.

[0006] (2) In the epoxy resin molding compound of the above-mentioned (1) publication, it is desirable to contain the dicyclopentadiene mold phenol resin in which the (B) curing agent is shown by the following general formula (II).

[Formula 7]
$$OH$$

$$OH$$

$$R^{1}$$

$$(R^{2})_{m}$$

$$R^{1}$$

$$(R^{2})_{m}$$

$$R^{1}$$

$$(R^{2})_{m}$$

$$R^{1}$$

$$(R^{2})_{m}$$

$$(R^{2})_{m}$$

$$(R^{2})_{m}$$

$$(R^{2})_{m}$$

However, by the general formula (II), R1 and R2 are chosen respectively independently of a hydrogen atom and the alkyl group of carbon numbers 1-6, and even if all m pieces are the same, they may differ. m shows the integer of 0, or 1-6, and n shows the integer of 0, or 1-10.

[0007] (3) In the epoxy resin molding compound of the above-mentioned (2) publication, it is desirable that the average of n of the dicyclopentadiene mold phenol resin shown by the general formula (II) is less than [0 or more] 0.5.

[0008] (4) either of above-mentioned (1) - (3) -- in the epoxy resin molding compound of a publication, it is desirable to contain the epoxy resin in which the (A) epoxy resin is shown by the following general formula (III).

However, by the general formula (III), R shows the alkyl group of a hydrogen atom, a permutation, or the unsubstituted carbon numbers 1-6, and even if all m pieces are the same, it may differ. m shows the integer of 0, or 1-2, and n shows the integer of 0, or 1-10.

[0009] (5) either of above-mentioned (1) - (4) -- in the epoxy resin molding compound of a publication, it is desirable to contain the epoxy resin in which the (A) epoxy resin is shown by the following general formula (IV).

However, by the general formula (IV), R1 and R2 are chosen respectively independently of a hydrogen atom and the alkyl group of carbon numbers 1-6, and even if all m pieces are the same, they may differ. m shows the integer of 0, or 1-6, and n shows the integer of 0, or 1-10.

[0010] (6) either of above-mentioned (1) - (5) -- in the epoxy resin molding compound of a publication, it is desirable to contain the epoxy resin in which the (A) epoxy resin is shown by the following general formula (V).

[Formula 10]

However, by the general formula (V), R1 is chosen from the alkyl group of a hydrogen atom, a permutation, or the unsubstituted carbon numbers 1-6, and even if all are the same, it may differ. R2 and R3 show the hydrocarbon group of a hydrogen atom, a permutation, or the unsubstituted carbon numbers 1-12, m shows the integer of 0, or 1-4, and n shows the integer of 0, or 1-5.

[0011] (7) either of above-mentioned (1) - (6) -- in the epoxy resin molding compound of a publication, it is desirable that the (A) epoxy resin contains either [at least] a sulfur atom content epoxy resin or a biphenyl mold epoxy resin.

[0012] Moreover, this invention relates to electronic-parts equipment equipped with the component in which the closure was carried out to either of above-mentioned (1) - (7) by the epoxy resin molding compound of a publication.
[0013]

[Embodiment of the Invention] Generally the (A) epoxy resin used in this invention is used for the epoxy resin constituent for the closures, and there is especially no limit. For example, a phenol novolak mold epoxy resin, polyglycidyl ether of o-cresol-form aldeyde novolac, Phenols including the epoxy resin which has a triphenylmethane color frame, Cresol, a xylenol, resorcinol, a catechol, bisphenol A, Phenols, such as Bisphenol F, and/or the alpha-naphthol, the beta-naphthol, Naphthols, such as dihydroxy naphthalene, formaldehyde, an acetaldehyde, The novolak mold epoxy resin which carried out epoxidation of condensation or the novolak resin which is made to carry out copolycondensation and is obtained for the compound which has aldehyde groups, such as propionaldehyde, a benzaldehyde, and salichlaldehyde, under the acid catalyst; Bisphenol A, Bisphenol F The diglycidyl ether of bisphenols, such as Bisphenol S (Bisphenol mold epoxy resin); -- diglycidyl ether [, such as alkylation or unsubstituted biphenol,] (biphenyl mold epoxy resin); -- stilbene mold epoxy resin; -- hydroquinone mold epoxy resin; -- a phthalic acid -- The glycidyl ester mold epoxy resin obtained by the reaction of polybasic acid and epichlorohydrin, such as dimer acid; Diamino diphenylmethane, By the reaction of polyamine and epichlorohydrin, such as isocyanuric acid The glycidyl amine mold epoxy resin; dicyclopentadiene obtained and the epoxy resin which has the epoxidation object (dicyclopentadiene mold epoxy resin); naphthalene ring of the copolycondensation resin of phenols (naphthalene mold epoxy resin); Phenol aralkyl resin, Olefin association is oxidized by peroxy acids, such as a peracetic acid. epoxidation object [of aralkyl mold phenol resin, such as naphthol aralkyl resin,]; -trimethylol propane mold epoxy resin; -- terpene modified epoxy resin; -- the line obtained -- an aliphatic series epoxy resin; alicycle group epoxy resin; sulfur atom content epoxy resin etc. is mentioned. These may be used independently or you may use combining two or more sorts. Especially, the novolak mold epoxy resin from a viewpoint of hardenability is desirable, it is desirable to contain the dicyclopentadiene mold epoxy resin from a viewpoint of low hygroscopicity, and it is desirable to contain the diglycidyl ether (bisphenol mold epoxy resin), sulfur atom content epoxy resin, or biphenyl mold epoxy resin of a bisphenol from a viewpoint of reflow-proof nature and a

[0014] As a novolak mold epoxy resin, the epoxy resin shown, for example by the following general formula (III) is mentioned.
[Formula 11]

(Here, R shows the alkyl group of a hydrogen atom, a permutation, or the unsubstituted carbon numbers 1-6, and even if all m pieces are the same, it may differ.) m shows the integer of 0, or 1-2, and n shows the integer of 0, or 1-10.

The novolak mold epoxy resin shown by the above-mentioned general formula (III) is easily obtained by making epichlorohydrin react to novolak mold phenol resin. Especially, as R in a general formula (III), the alkyl group of the carbon numbers 1-6, such as a hydrogen atom, a methyl group, an ethyl group, a propyl group, butyl, an isopropyl group, an isobutyl radical, and t-butyl, is desirable, a hydrogen atom or a methyl group is more desirable, and a methyl group is still more desirable. As for m, 0 or 1 is desirable, and 1 is more desirable. The integer of n of 0, or 1-5 is desirable. As desirable structure of the novolak mold epoxy resin shown by the above-mentioned general formula (III), the o-cresol novolak mold epoxy resin shown, for example by the following general formula (VI) is mentioned. In order to demonstrate the engine performance, as for the loadings in the case of using a novolak mold epoxy resin, it is desirable to consider as 20 % of the weight or more to the epoxy resin whole quantity, its 30 % of the weight or more is more desirable, and its 40 % of the weight or more is still more desirable.

(Here, n shows the integer of 0, or 1-5.)

[0015] As a dicyclopentadiene mold epoxy resin, the epoxy resin shown, for example by the following general formula (IV) is mentioned.

[Formula 13]
$$CH_{2}CH^$$

(Here, R1 and R2 are chosen respectively independently of a hydrogen atom and the alkyl group of carbon numbers 1-6, and even if all m pieces are the same, they may differ.) m shows the integer of 0, or 1-6, and n shows the integer of 0, or 1-10. As R1 in the above-mentioned formula (IV), for example, the alkyl group of the carbon numbers 1-6, such as a hydrogen atom, a methyl group, an ethyl group, a propyl group, butyl, an isopropyl group, an isobutyl radical, and t-butyl, is mentioned, especially, an alkyl group and hydrogen atoms, such as a methyl group and an ethyl group, are desirable, and a methyl group and a hydrogen atom are more desirable. As R2, for example, the alkyl group of the carbon numbers 1-6, such as a hydrogen atom, a methyl group, an ethyl group, a propyl group, butyl, an isopropyl group, an isobutyl radical, and t-butyl, is mentioned, and a hydrogen atom is desirable especially. As for m, 0 or 1 is desirable, and 0 is more desirable. The integer of n of 0, or 1-5 is desirable. As desirable structure of the dicyclopentadiene mold epoxy resin shown by the above-mentioned general formula (IV), the dicyclopentadiene mold epoxy resin shown, for example by the following general formula (VII) is mentioned. In order to demonstrate the engine performance, as for the loadings in the case of using a dicyclopentadiene mold epoxy resin, it is desirable to consider as 1-30~% of the weight to the epoxy resin whole quantity, and its 5-20 % of the weight is more desirable. [Formula 14]

$$\begin{array}{c} \text{CH}_{2}\text{-CH}\text{-CH}_{2} \\ \text{O} \\ \text{$$

(Here, n shows 0 or 1.)

[0016] As diglycidyl ether (bisphenol mold epoxy resin) of a bisphenol, the epoxy resin shown, for example by the following general formula (V) is mentioned.

[Formula 15]

$$\begin{array}{c} \text{CH}_2\text{CH} \cdot \text{CH}_2 \cdot \text{C$$

(Here, R1 is chosen from the alkyl group of a hydrogen atom, a permutation, or the unsubstituted carbon numbers 1-6, and even if all are the same, it may differ.) R2 and R3 show the hydrocarbon group of a hydrogen atom, a permutation, or the unsubstituted carbon numbers 1-12, m shows the integer of 0, or 1-4, and n shows the integer of 0, or 1-5

As R1 in the above-mentioned general formula (V), for example, the alkyl group of the carbon numbers 1-6, such as a hydrogen atom, a methyl group, an ethyl group, a propyl group, butyl, an isopropyl group, and t-butyl, is mentioned, especially, an alkyl group and hydrogen atoms, such as a methyl group and an ethyl group, are desirable, and a methyl group and a hydrogen atom are more desirable. As R2 and R3, for example A hydrogen atom, a methyl group, an ethyl group, The alkyl group of the carbon numbers 1-6, such as a propyl group, butyl, an isopropyl group, an isobutyl radical, and t-butyl, Alkenyl radicals, such as a vinyl group, an allyl group, and a butenyl group, a phenyl group, a biphenyl radical, Aryl groups, such as 1-naphthyl group and 2-naphthyl group, o-tolyl group, m-tolyl group, p-tolyl group, 2, 3-xylyl group, 2, 4-xylyl group, o-KUMENIRU radical, Alkyl group permutation aryl groups, such as m-KUMENIRU radical, p-KUMENIRU radical, and a mesityl radical, The hydrocarbon group of the permutation of the carbon numbers 1-12, such as an alkyl halide radical, an amino-group permutation alkyl group, and a sulfhydryl group permutation alkyl group, or unsubstituted monovalence is mentioned. Especially, a hydrogen atom, a methyl group, an ethyl group, a phenyl group, and a biphenyl radical are desirable, and a methyl group and a phenyl group are more desirable. As for m, 0, 1, or 2 is desirable, and 0 is more desirable. The integer of n of 0, or 1-3 is desirable. As desirable structure of the diglycidyl ether of the bisphenol shown by the above-mentioned general formula (V), the epoxy resin shown, for example by the following general formula (VIII) and (IX) is mentioned. In order to demonstrate the engine performance, as for the loadings in the case of using the diglycidyl ether of a bisphenol, it is desirable to consider as 1 - 30 % of the weight to the epoxy resin whole quantity, and its 5 - 20 % of the weight is more desirable.

[Formula 16]

$$\begin{array}{c} \text{CH}_{2}\text{CH}_{2}\text{CH}_{2} + \text{CH}_{2} + \text{O} + \text{CH}_{2} + \text{O} + \text{CH}_{2} + \text{CH}_{2} + \text{O} + \text{CH}_{2} + \text{CH}_{2} + \text{O} + \text{CH}_{2} + \text{CH}_{2} + \text{CH}_{2} + \text{O} + \text{CH}_{2} + \text{CH}$$

(Here, n shows the integer of 0, or 1-3.) [Formula 17]

CH₂CH CH₂ CH₂ OCH₂ CHCH₂ OCH₂ CHCH₂ (IX)

(Here, n shows the integer of 0, or 1-3.)

[0017] The epoxy resin shown for example, by the following general formula (X) as a sulfur atom content epoxy resin is mentioned.
[Formula 18]

$$\begin{array}{c} \text{CH}_{2}\text{CH} \cdot \text{CH}_{2} + \left(O \overset{(R^{1}) \text{Im}}{\underset{O}{\longleftarrow}} S \overset{(R^{1}) \text{Im}}{\underset{O}{\longleftarrow}} O \cdot \text{CH}_{2} \cdot \text{CH} \cdot \text{CH}_{2} + \left(O \overset{(R^{1}) \text{Im}}{\underset{O}{\longleftarrow}} O \cdot \text{CH}_{2} \cdot \text{CH} \cdot \text{CH}_{2} \cdot \text$$

(Here, R1 is chosen from the alkyl group of a hydrogen atom and a permutation, or the unsubstituted carbon numbers 1-6, and even if all are the same, it may differ.) m shows the integer of 0, or 1-3. As R1 in the above-mentioned general formula (X), for example, the alkyl group of the carbon numbers 1-6, such as a hydrogen atom, a methyl group, an ethyl group, a propyl group, butyl, an isopropyl group, an isobutyl radical, and t-butyl, is mentioned, especially, a hydrogen atom and a methyl group, an ethyl group, a propyl group, and t-butyl are desirable, and a hydrogen atom, a methyl group, and t-butyl are more desirable. As for m, 0, 1, or 2 is desirable, and 2 is more desirable. As for n, 0, 1, or 2 is desirable structure of the sulfur atom content epoxy resin shown by the above-mentioned general formula (X), the epoxy resin shown, for example by the following general formula (XI) is mentioned.

[Formula 19]

(Here, n shows 0, 1, and 2.)

In order to demonstrate the engine performance, as for the loadings in the case of using a sulfur atom content epoxy resin, it is desirable to consider as 1-40 % of the weight to the epoxy resin whole quantity, and its 10-30 % of the weight is more desirable. [0018] The epoxy resin shown for example, by the following general formula (XII) as a biphenyl mold epoxy resin is mentioned. [Formula 20]

$$\begin{array}{c} \text{CH}_{2}\text{-CH}\text{-CH}_{2} \\ \text{CH}_{2}\text{-CH}_{2}\text{-CH}_{2} \\ \text{CH}_{2}\text{-CH}_{2} \\ \text{CH}_{2}\text{-CH}_{2} \\ \text{CH}_{2}\text{-CH}_{2} \\ \text{CH}_{2}\text{-CH}_{2} \\ \text{CH}_{2}\text{-CH}_{2} \\ \text{CH}_{2}\text{-CH}_{2}\text{-CH}_{2} \\ \text{CH}_{2}\text{-CH}_{2} \\ \text{CH}_{2} \\ \text{CH}_{2}\text{-CH}_{2} \\ \text{CH}_{2} \\ \text{CH}_{2} \\ \text{CH}_{2} \\ \text{CH}_{2}\text{-CH}_{2} \\ \text{CH}_{2} \\ \text{CH}_{$$

(Here, R1 is chosen from the alkyl group of a hydrogen atom and a permutation, or the unsubstituted carbon numbers 1-6, and even if all are the same, it may differ.) m shows the integer of 0, or 1-3. As R1 in the above-mentioned general formula (XII), for example, the alkyl group of the carbon numbers 1-6, such as a hydrogen atom, a methyl group, an ethyl group, a propyl group, butyl, an isopropyl group, an isobutyl radical, and t-butyl, is mentioned, especially, a hydrogen atom and a methyl group, and an ethyl group are desirable, and a hydrogen atom and a methyl group are more desirable. As for m, 0, 1, or 2 is desirable, and 2 is more desirable. As for n, 0, 1, or 2 is desirable structure of the biphenyl mold epoxy resin shown by the above-mentioned general formula (XII), the epoxy resin shown, for example by the following general formula (XIII) is mentioned. [Formula 21]

(Here, n shows 0, 1, and 2.)

When using a biphenyl mold epoxy resin, in order to demonstrate the engine performance, as for the loadings, it is desirable to consider as 1 - 40 % of the weight to the epoxy resin whole quantity, and its 10 - 30 % of the weight is more desirable.

[0019] As for the loadings of the above-mentioned novolak mold epoxy resin, a dicyclopentadiene mold epoxy resin, the diglycidyl ether of biphenol, a sulfur atom content epoxy resin, and a biphenyl mold epoxy resin, it is desirable to consider as 50 % of the weight or more in all to the epoxy resin whole quantity, its 60 % of the weight or more is more desirable, and its 80 % of the weight or more is still more desirable. Furthermore, as for the rate in the case of using the above-mentioned epoxy resin

together, it is desirable that the weight ratios of total amount/(novolak mold epoxy resin) of (a dicyclopentadiene mold epoxy resin, the diglycidyl ether of biphenol, a sulfur atom content epoxy resin, and a biphenyl mold epoxy resin) are 1/5-4/1, 1/4-3/1 are more desirable, and 1/3-2/1 are still more desirable. When the rate of the total amount of (a dicyclopentadiene mold epoxy resin, the diglycidyl ether of biphenol, a sulfur atom content epoxy resin, and a biphenyl mold epoxy resin) increases too much, it is in the inclination for a degree of hardness to fall at the time of heat, and when the rate of a novolak mold epoxy resin increases too much, it is in the inclination for reflow-proof nature to fall.

[0020] The (B) curing agent used in this invention contains at least the phenol resin shown by the following general formula (I). It is 11 or less % of the weight in the phenol resin in which the n= 1 or more amounts of components in a general formula (I) are shown by the general formula (I). and that by which the content of the polyfunctional phenol component which contains a phenolic hydroxyl group by three or more averages is alike other than this, and is generally used for 1 intramolecular into (B) curing agent whole quantity by the epoxy resin molding compound for the closures that what is necessary is just less than 10 % of the weight can also be used together. [Formula 22]

$$\begin{array}{c|c}
OH & OH \\
\hline
OH & OH \\
\hline
\stackrel{1}{\downarrow^{j}} CH_{2} & OH$$

(Here, R shows the alkyl group of a hydrogen atom, a permutation, or the unsubstituted carbon numbers 1-6, m shows the integer of 0, or 1-2, and n shows the integer of 0, or 1-10.)

[0021] As R in the above-mentioned general formula (I), for example, the alkyl group of the carbon numbers 1-6, such as a hydrogen atom, a methyl group, an ethyl group, a propyl group, butyl, an isopropyl group, an isobutyl radical, and t-butyl, is mentioned, especially, a hydrogen atom, a methyl group, and an ethyl group are desirable, and a hydrogen atom and a methyl group are more desirable. As for m, 0, 1, or 2 is desirable, and 0 is more desirable. As for n, 0, 1, or 2 is desirable structure of the phenol resin shown by the general formula (I), the phenol resin shown by the following general formula (XIV) is mentioned, for example.

Although the phenol resin shown by the above-mentioned general formula (I) makes the constituent structure by which n is shown for the integer of 0, or 1-10, the n= 1 or more amounts of components are 11 or less % of the weight of the whole phenol resin shown by the general formula (I) as those rates, its 10 or less % of the weight is desirable, and its 5 or less % of the weight is more desirable. When larger than 11 % of the weight, it is in the inclination for a fluidity, reflow-proof nature, and wire sweep nature to fall. The n= 1 or more amounts of constituents of the phenol resin shown by the general formula (I) can be calculated from the surface ratio which could ask for by the well-known approach conventionally for example, which was measured by the gel permeation chromatograph.

[0022] In order to acquire the effectiveness of this invention, the amount of components of n=0 in the phenol resin shown by the general formula (I) is important, and they can take the isomer structure shown by following general formula (XV) - (XVII). Although especially the ratio of these isomers is not limited, it is desirable that the structure shown by the general formula (XVII) in the component whole quantity of n=0 in the phenol resin shown by the general formula (I) is 10-60% of the weight, and it is more desirable that it is 20-40% of the weight. When fewer than 10% of the weight, the softening temperature of phenol resin becomes low and it is in the inclination for workability to fall, and when it increases more than 60% of the weight, there is an

inclination for the softening temperature of phenol resin to become high and for distribution in an epoxy resin molding compound to become inadequate.

[0023] Generally as a curing agent which can be used together to the phenol resin shown by said general formula (I) as a (B) curing agent of this invention, it is used for the epoxy resin constituent for the closures, and there is especially no limit. For example, a phenol, cresol, resorcinol, a catechol, bisphenol A, Phenols and/or alpha-naphthol, such as phenylphenol and an aminophenol, Naphthols, formaldehyde, such as beta-naphthol and dihydroxy naphthalene, An acetaldehyde, propionaldehyde, a benzaldehyde, Aldehyde groups, such as salichlaldehyde The phenol aralkyl resin compounded under an acid catalyst in the compound which it has from condensation or the novolak mold phenol resin; phenols which is made to carry out copolycondensation and is obtained and/or naphthols, dimethoxy paraxylene, or a bis(methoxymethyl) biphenyl, Aralkyl mold phenol resin, such as naphthol aralkyl resin; Are compounded by copolymerization from phenols and/or naphthols, and a cyclopentadiene. Dicyclopentadiene mold phenol resin, dicyclopentadiene mold naphthol resin; terpene denaturation phenol resin; biphenyl mold phenol resin; triphenylmethane color mold phenol resin etc. is mentioned, and these may be used independently or you may use combining two or more sorts. Especially, from a viewpoint of low hygroscopicity, dicyclopentadiene mold phenol resin is desirable. [0024] As dicyclopentadiene mold phenol resin, the phenol resin shown, for example by the following general formula (II) is mentioned.

[Formula 27] OH OH
$$\mathbb{R}^1$$
 (\mathbb{R}^2) \mathbb{R}^1 \mathbb{R}^1 (\mathbb{R}^2) \mathbb{R}^1 (\mathbb{R}^2) \mathbb{R}^1

(Here, R1 and R2 are chosen respectively independently of a hydrogen atom and the alkyl group of carbon numbers 1-6, and even if all m pieces are the same, they may differ.) m shows the integer of 0, or 1-6, and n shows the integer of 0, or 1-10. For example, the alkyl group of the carbon numbers 1-6, such as a hydrogen atom, a methyl group, an ethyl group, a propyl group, butyl, an isopropyl group, an isobutyl radical, and t-butyl, is mentioned, as R1 and R2 in the above-mentioned general formula (II), especially, a hydrogen atom and a methyl group are desirable, and a hydrogen atom is more desirable. Although n can take the integer of 0, or 1-10 to arbitration, it is desirable that the amount of components expressed with n= 1 or more integers is 30 or less % of the weight in a general formula (II), and its 20 or less % of the weight is more desirable. When [than 30 % of the weight] more, it is in the inclination for a fluidity to fall. Moreover, when n of each component contained in the dicyclopentadiene mold phenol resin shown by the above-mentioned general formula (II) is averaged by the whole dicyclopentadiene mold phenol resin shown by the general formula (II), as for the average of n, less than [0 or more] 0.5 are desirable, 0-0.4 are more desirable, and 0-0.3 are still more desirable. Here, it is shown that the dicyclopentadiene mold phenol resin shown by the above-mentioned general formula (II) consists of only 2 organic-functions components when the average of n is 0, and when the average of n is 1, the dicyclopentadiene mold phenol resin shown by the above-mentioned general formula

(II) can be considered as phenol resin of three functionality as a whole. There is an inclination for a fluidity to fall that the average of n is 0.5 or more. [0025] Although it can use without a limit especially as softening temperature of the dicyclopentadiene mold phenol resin shown by the above-mentioned general formula (II), in order to mix to homogeneity in the epoxy resin molding compound of this invention, it is desirable that it is the range of 40 degrees C - 110 degrees C, and 50 degrees C - 90 degrees C are still more desirable from a viewpoint of reflow-proof nature. As desirable structure of the dicyclopentadiene mold phenol resin shown by the general formula (II), the dicyclopentadiene mold phenol resin shown, for example by the following general formula (XVIII) is mentioned.

[Formula 28]

(Here, n shows the integer of 0, or 1-10.)

When using dicyclopentadiene mold phenol resin, in order to demonstrate the engine performance, as for the loadings, it is desirable to consider as 20-80% of the weight to the curing agent whole quantity, its 30-70% of the weight or more is more desirable, and its 40-65% of the weight is still more desirable. When fewer than 20% of the weight, the addition effectiveness is not fully demonstrated, but when [than 80% of the weight] more, a fluidity tends to fall.

[0026] (A) although the equivalent ratio of an epoxy resin and the (B) curing agent, i.e., the ratio of the number of hydroxyl groups in the curing agent to the number of epoxy groups in an epoxy resin, (the number of epoxy groups in the number of hydroxyl groups / epoxy resin in a curing agent) does not have especially a limit -- each -- unreacted -- a part -- in order to stop few, it is desirable to be set as the range of 0.5-2, and 0.6-1.3 are more desirable. In order to obtain the epoxy resin molding compound which is excellent in a moldability and solder-proof reflow nature, it is still more desirable to be set as the range of 0.8-1.2.

[0027] As a (C) hardening accelerator used in this invention Although it is generally used by the epoxy resin molding compound and there is especially no limit, for example 1 and 8-diazabicyclo [5.4.0] undecene-diazabicyclo [7, 1, and 5-] [4.3.0] nonene - To the cyclo amidine compounds and these compounds of 5, 5, 6-dibutylamino -1, and 8-diazabicyclo [5.4.0] undecene-7 grade, maleic anhydride, The 1, 4-benzoquinone, 2, 5-torr quinone, 1,4-naphthoquinone, 2, 3-dimethyl benzoquinone, 2, 6-dimethyl benzoquinone, 2, the 3-dimethoxy-5-methyl-1, 4-benzoquinone, Quinone compounds, such as 2, 3-dimethoxy-1, 4-benzoquinone, and phenyl-1, 4-benzoquinone, The compound which has intramolecular polarization which comes to add a compound with pi bonding, such as a diazo phenylmethane and phenol resin, Benzyl dimethylamine, triethanolamine, dimethylamino ethanol, The third class amines and these derivatives, such as a tris (dimethyl aminomethyl) phenol, 2-methylimidazole, 2-phenylimidazole, 2-phenyl-4-methyl imidazole, Imidazole derivatives and these derivatives, such as 2-heptadecylimidazole, Tributyl phosphine, methyl diphenylphosphine, triphenyl phosphine, A tris (4-methylphenyl) phosphine, diphenylphosphine, In organic phosphines and these phosphines, such as a phenyl phosphine, a maleic anhydride, The phosphorus compounds which have intramolecular polarization which comes to add a compound with pi bonding, such as the above-mentioned quinone compound, a diazo phenylmethane, and phenol resin, Tetra-phenyl phosphonium tetraphenylborate, TETORAFENIRUHOSUHONIUMU ethyl triphenyl borate, Tetra-permutation phosphonium tetra-permutation borate, such as tetrabuthyl phosphonium tetrabuthyl borate, Tetraphenylboron salts, these derivatives, etc., such as 2-ethyl-4-methylimidazole tetraphenyl borate and N-methyl morpholine tetraphenyl borate, may be mentioned, and these one sort may be used independently, or two or more sorts may be combined and you may use. Especially, from hardenability and a fluid viewpoint, the addition product of tertiary phosphine and a quinone compound is desirable, from a viewpoint of preservation stability, the addition product of a cyclo amidine compound and phenol resin is desirable, and the phenol novolak resin salt of diazabicycloundecen

is more desirable. 60 % of the weight or more in all of the loadings of these hardening accelerators is desirable to the hardening-accelerator whole quantity, and its 80 % of the weight or more is more desirable.

[0028] Although there is especially no limit as tertiary phosphine used for the addition product of tertiary phosphine and a quinone compound, for example Tributyl phosphine, tri-cyclohexyl phosphine, a dibutyl phenyl phosphine, Butyl diphenylphosphine, ethyl diphenylphosphine, triphenyl phosphine, A tris (4-methylphenyl) phosphine, a tris (4-ethyl phenyl) phosphine, A tris (4-propyl phenyl) phosphine, a tris (4-buthylphenyl) phosphine, A tris (2, 4-dimethylphenyl) phosphine, a tris (2, 6-dimethylphenyl) phosphine, A tris (2, 4-dimethylphenyl) phosphine, a tris (2, 6-dimethyl-4-ethoxy phenyl) phosphine, The tertiary phosphine which has aryl groups, such as a tris (4-methoxypheny) phosphine and a tris (4-ethoxy phenyl) phosphine, is mentioned, and triphenyl phosphine or a tris (4-methylphenyl) phosphine is desirable from the point of a moldability. Moreover, although there is especially no limit as a quinone compound used for the addition product of tertiary phosphine and a quinone compound, for example, o-benzoquinone, para benzoquinone, diphenoquinone, 1,4-naphthoquinone, anthraquinone, etc. are mentioned, and para benzoquinone is desirable from a fluid viewpoint.

[0029] Although the loadings of a hardening accelerator are not limited especially if they are an amount in which a hardening facilitatory effect is attained, its 0.1 - 10 weight section is desirable to the total quantity 100 weight section of the (A) epoxy resin and the (B) curing agent, and its 0.3 - 5 weight section is more desirable. Under in the 0.1 weight section, when it becomes difficult to make it harden for a short time and it exceeds 10 weight sections, there is an inclination for a cure rate to be too early and for good mold goods not to be obtained.

[0030] The (D) inorganic bulking agent used in this invention It is what is blended with an epoxy resin molding compound for the improvement in on the strength on hygroscopicity, coefficient-of-linear-expansion reduction, and a heat-conduction disposition. For example, fused silica, a crystal silica, an alumina, zircon, a calcium silicate, A calcium carbonate, potassium titanate, silicon carbide, silicon nitride, nitriding aluminum, Fine particles, such as boron nitride, beryllia, a zirconia, zircon, a FOSUTE light, a steatite, a spinel, a mullite, and a titania, or the bead which conglobated these, a glass fiber, etc. are mentioned, and these one sort may be used independently or you may use combining two or more sorts. Furthermore, as an inorganic bulking agent with fire-resistant effectiveness, compound metal hydroxides, such as a compound hydroxide of an aluminum hydroxide, a magnesium hydroxide, zinc borate, molybdic-acid zinc, and magnesium and zinc, etc. are mentioned, and these one sort may be used independently or you may use combining two or more sorts. Especially, from a viewpoint of coefficient-of-linear-expansion reduction, an alumina is desirable from a viewpoint of high temperature conductivity [fused silica]. From the point of the fluidity at the time of shaping, or metal mold abrasiveness, the near form of the configuration of a bulking agent is spherically [a globular form or] desirable. (D) From a viewpoint of reduction of a moldability, hygroscopicity, and coefficient of linear expansion, and the improvement in on the strength, the loadings of an inorganic bulking agent have 70 desirable % of the weight or more to an epoxy resin molding compound, and its 95 or less % of the weight is more more desirable than 80 % of the weight mostly. At less than 70 % of the weight, when there is an inclination for reflow crack resistance to fall and it exceeds 95 % of the weight, there is an inclination for a fluidity to run short.

[0031] Moreover, to the epoxy resin molding compound of this invention, in order to raise the adhesive property of a resinous principle and an inorganic bulking agent, well-known coupling agents, such as various silane system compounds, such as an epoxy silane, a mercapto silane, an amino silane, an alkyl silane, an methacrylic silane, an ureido silane, and vinylsilane, a titanium system compound, aluminum chelates, and aluminum / zirconium system compound, can be added if needed. When these are illustrated, vinyl trichlorosilane, vinyltriethoxysilane, A vinyl tris (beta-methoxyethoxy) silane, gamma-methacryloxpropyl trimethoxy silane,

gamma-methacryloxypropyl triethoxysilane, gamma-acryloxyprophyltrimethoxysilane, beta-(3, 4-epoxycyclohexyl) ethyltrimethoxysilane, Gamma-glycidoxypropyltrimetoxysilane, gamma-glycidoxy propyl methyldimethoxysilane, Vinyltriacetoxysilane, gamma-mercapto propyltrimethoxysilane, gamma-aminopropyl triethoxysilane, gamma-ANIRINO propyltrimethoxysilane, gamma-ANIRINO propylmethyl dimethoxysilane, gamma-[bis(beta-hydroxyethyl)] aminopropyl triethoxysilane, N-beta-(aminoethyl)-gamma-aminopropyl trimethoxysilane, gamma-(beta-aminoethyl) aminopropyl dimethoxymethylsilane, N-(trimethoxysilylpropyl) ethylenediamine, N-(dimethoxymethyl silyl isopropyl) ethylenediamine, Methyl trimetoxysilane, dimethyldimethoxysilane, methyl triethoxysilane, N-beta-(N-vinylbenzyl aminoethyl)-gamma-aminopropyl trimethoxysilane, Gamma-chloropropyltrimetoxysilane, a hexa methyl disilane, vinyltrimetoxysilane, Gamma-mercaptpropylmethyl dimethoxysilane, gamma-methacryloxpropyl trimethoxy silane, gamma-methacryloxypropyl triethoxysilane, gamma-acryloxyprophyltrimethoxysilane, Silane system coupling agents, such as gamma-acryloxyprophyltriethoxysilane, Isopropylisostearoyl titanate, isopropyl tris (dioctylpyrophosphate) titanate, Isopropanal PIRUTORI (N-aminoethyl-aminoethyl) titanate, Tetra-octyl bis(JITORIDE sill phosphite) titanate, tetrapod (2 and 2-diaryl oxymethyl-1-butyl) bis(JITORIDESHIRU) phosphite titanate, Bis(dioctylpyrophosphate) oxy-acetate titanate, Bis(dioctylpyrophosphate) ethylene titanate, isopropanal PIRUTORI octanoyl titanate, Isopropyldimethacryl isostearoyltitanate, isopropyl tridodecyl benzenesulphonyl titanate, Isopropyl ISOSUTEAROIRUJI acrylic titanate, isopropanal PIRUTORI (dioctyl phosphate) titanate, Titanate system coupling agents, such as isopropyl TORIKUMIRU phenyl titanate and tetra-isopropyl bis(dioctyl phosphite) titanate, etc. are mentioned, and these one sort may be used independently or you may use combining two or more sorts.

[0032] As for the loadings of the above-mentioned coupling agent, it is desirable that it is 0.05-5% of the weight to the (D) inorganic bulking agent, and its 0.1-2.5% of the weight is more desirable. At less than 0.05% of the weight, when there is an inclination for an adhesive property with a frame to fall and it exceeds 5% of the weight, there is an inclination for a moldability to fall.

[0033] A well-known flame retarder can be conventionally blended with the epoxy resin molding compound of this invention if needed. For example, an aluminum hydroxide, a magnesium hydroxide, a zinc oxide, stannic acid zinc, The inorganic compound containing metallic elements, such as zinc borate, ferrous oxide, antimony oxide, molybdenum oxide, and molybdic-acid zinc; Red phosphorus, Phosphorus compounds, such as phosphoric ester and phosphine OKISAITO; A melamine, A melamine derivative, melamine denaturation phenol resin, the compound that has a triazine ring, Lynn and nitrogen content compounds, such as nitrogen content compound; cyclo phosphazene, such as a cyanuric acid derivative and an isocyanuric acid derivative; A bromination epoxy resin, fire-resistant halogenides [, such as bromination phenol resin,]; -- organometallic compound [, such as dicyclopentadienyl iron]; -- the compound metal hydroxide shown with the following empirical formula (XIX) is mentioned. These one sort may be used independently or you may use combining two or more sorts. Moreover, covering which consists of the organic substance for the purpose, like preventing the decomposition by moisture absorption which raises the dispersibility to an epoxy resin molding compound, and the thing of an inorganic system raises hardenability may be given among the flame retarders shown above.

[Formula 29]

p(M1a0b) - q(M2c0d) - r(M3c0d) and mH20 (XIX)

(Here, M1, M2, and M3 show a mutually different metallic element, a, b, c, d, p, q, and m show a positive number, and r shows 0 or a positive number.)

[0034] Although there will be especially no limit if M1, M2, and M3 in the above-mentioned empirical formula (XIX) are a mutually different metallic element, from a fire-resistant viewpoint M1 The metallic element of the 3rd period, an IIA group's alkaline-earth-metal element, an IVB group, It is chosen out of the metallic element belonging to an IIB group, a VIII group, IB group, an IIIA group, and an IVA group. It is desirable that M2 is chosen from an IIIB-IIB group's transition-metals element. It is

more desirable that M1 is chosen from magnesium, calcium, aluminum, tin, titanium, iron, cobalt, nickel, copper, and zinc, and M2 is chosen from iron, cobalt, nickel, copper, and zinc. From a fluid viewpoint, M1 is magnesium, M2 is zinc or nickel, and the thing of r= 0 is desirable. Although especially a limit does not have the mole ratio of p, q, and r, it is r= 0 and it is desirable that p/q is 1 / 99 - 1/1. In addition, the classification of a metallic element was performed based on the periodic table (source: the 30th ** of KYORITSU SHUPPAN Co., Ltd. issue "chemistry great dictionary 4" February 15, 1987 miniature edition) of the long period mold with which a typical element is made into A subgroup and it makes a transition element B subgroup.

[0035] Moreover, an anion exchanger can be blended with the epoxy resin molding compound of this invention if needed in order to raise the moisture resistance of IC, and an elevated-temperature neglect property. Although there is especially no limit as an anion exchanger and a well-known thing can be used conventionally, for example, hydrotalcites, the water oxide of the element chosen from magnesium, aluminum, titanium, a zirconium, and a bismuth, etc. are mentioned, and **** for independent may also use these combining two or more kinds. Especially, the hydrotalcite shown by the degree type (XX) is desirable.

[Formula 30]

Mg1-XAIX (OH) 2(CO3) X/2, and mH20 (XX)

 $(0 \le X \le 0.5 \text{ and m are a positive integer})$

Although there will be especially no limit if the loadings of these anion exchangers are ten daily doses which can catch anions, such as halogen ion, 0.1 - 30% of the weight of the range is desirable to the (A) epoxy resin, and 1 - 5% of the weight is more desirable.

[0036] An adhesion promoter can be blended with the epoxy resin molding compound of this invention if needed. In order to raise the adhesive property of a copper frame and an epoxy resin molding compound especially, combination of an adhesion promoter is effective. Although there is especially no limit as an adhesion promoter and a well-known thing can be used conventionally, these derivatives and an aliphatic series acid-amide compound and dithiocarbamate, such as these derivatives and an anthranilic acid and gallic acids, such as an imidazole, triazole, tetrazole, and triazine, a malonic acid, a malic acid, a maleic acid, an aminophenol, and a quinoline, a thiadiazole derivative, etc. are mentioned, and these may be used independently or you may use combining two or more kinds, for example.

[0037] A release agent may be used for the epoxy resin molding compound of this invention if needed. as a release agent -- the polyolefine of an oxidation type or a non-oxidation type -- the (A) epoxy resin 100 weight section -- receiving -- **** for 0.01 - 10 weight sections -- things -- desirable -- **** for 0.1 - 5 weight sections -things are more desirable. When there is an inclination which becomes inadequate [under the 0.01 weight section / a mold-release characteristic] and 10 weight sections are exceeded, there is an inclination for an adhesive property to fall. As polyolefine of an oxidation type or a non-oxidation type, the low molecular weight polyethylene whose number average molecular weight, such as the Hoechst A.G. make H4, and PE, PED series, is 500 to about 10000 is mentioned. Moreover, as release agents other than this, carnauba wax, montanoic acid ester, a montanoic acid, stearin acid, etc. may be mentioned, for example, and these one sort may be used independently, or two or more sorts may be combined and you may use. When using a release agent besides these together in addition to the polyolefine of an oxidation type or a non-oxidation type, the loadings have desirable 0.1 - 10 weight section to the (A) epoxy resin 100 weight section, and its 0.5 - 3 weight section is more desirable. Moreover, coloring agents, such as stress relaxation agents, such as silicone oil and silicone rubber powder, carbon black, organic dye, an organic pigment, titanium oxide, a minium, and red ocher, etc. can be blended with the epoxy resin molding compound of this invention as other additives if needed.

[0038] If distributed mixing of the various components can be carried out at homogeneity, no matter what technique it may use, it can prepare, but after mixing the component of predetermined loadings enough by a mixer etc. as general technique and the

epoxy resin molding compound of this invention carries out melting kneading with a roll mill, an extruder, etc., it can mention the approach of cooling and pulverizing. For example, it can obtain by the approach of agitating and mixing to homogeneity, kneading by the kneader and roll which have been beforehand heated at 70-140 degrees C, an extruder, etc., cooling, and grinding the specified quantity of the component mentioned above. It will be easy to use if it tablet-izes by a dimension and weight which suit a process condition.

[0039] As electronic-parts equipment equipped with the component closed by the epoxy resin molding compound obtained by this invention, components, such as passive elements, such as active elements, such as a semiconductor chip, a transistor, diode, and a thyristor, a capacitor, a resistor, and a coil, are carried in supporter material, such as a leadframe, a tape career [finishing / wiring], a patchboard, glass, and a silicon wafer, and the electronic-parts equipment which closed the required part by the epoxy resin molding compound of this invention is mentioned. As such electronic-parts equipment, a semiconductor device is fixed on a leadframe, for example. After connecting the terminal area and the lead sections of a component, such as a bonding pad, by wirebonding or the bump, Come to close by transfer molding etc. using the epoxy resin molding compound of this invention. DIP (Dual Inline Package), PLCC (Plastic Leaded Chip Carrier), QFP (Quad Flat Package), SOP (Small Outline Package), SOJ (Small Outline J-lead package), TSOP (Thin Small Outline Package), The common plastic molded types IC, such as TQFP (Thin Quad Flat Package) TCP which closed the semiconductor chip connected to the tape career by the bump by the epoxy resin molding compound of this invention (Tape Carrier Package), To wiring formed on a patchboard or glass, wirebonding, flip chip bonding, An active element and/or capacitors, such as a semiconductor chip connected with solder etc., a transistor, diode, and a thyristor, The COB (Chip On Board) module which closed passive elements, such as a resistor and a coil, by the epoxy resin molding compound of this invention, A component is carried in the front face of the organic substrate in which the terminal for patchboard connection was formed at the hybrid IC, the multi chip module, and the rear face. After connecting wiring formed in the component and the organic substrate of a bump or wirebonding, BGA (Ball Grid Array), CSP (Chip Size Package), etc. which closed the component by the epoxy resin molding compound of this invention are mentioned. Moreover, the epoxy resin molding compound of this invention can be effectively used also for a printed circuit board. [0040] As an approach of closing a component using the epoxy resin molding compound of this invention, although the low voltage transfer-molding method is the most common, the injection fabricating method, compression forming, etc. may be used.

[Example] Next, although an example explains this invention, the range of this invention is not limited to these examples.

(Examples 1-10, examples 1-4 of a comparison) As an epoxy resin, it is an epoxy resin 1:o-cresol novolak mold epoxy resin (weight per epoxy equivalent 195 and 62 degrees C of softening temperatures). the Sumitomo Chemical Co., Ltd. make — trade name ESCN-190 and an epoxy resin 2:dicyclopentadiene denaturation phenol novolak mold epoxy resin (weight per epoxy equivalent 264 and 64 degrees C of softening temperatures) the Dainippon Ink & Chemicals, Inc. make — trade name HP-7200 and an epoxy resin 3:bisphenol A mold epoxy resin (weight per epoxy equivalent 468 and 64 degrees C of softening temperatures) The trade name E-1001 by Japan epoxy resin incorporated company, an epoxy resin 4: Biphenyl skeletal pattern epoxy resin (weight per epoxy equivalent 187 and the melting point of 106 degrees C) Japan epoxy resin incorporated company make — trade name YX-4000 and an epoxy resin 5:sulfur atom content epoxy resin (weight per epoxy equivalent 242, melting point of 119 degrees C, trade name YSLV[by Nippon Steel Chemical Co., Ltd.]-120TE) were prepared.

[0042] It is phenol novolak resin (a hydroxyl equivalent 100 and the melting point of 120 degrees C) whose n= 1 or more amounts of components in a formula it is expressed with the curing agent 1:following general formula (XIV) as a curing agent, and are 10 % of the weight. Dicyclopentadiene mold phenol resin which contains a phenolic hydroxyl group by 2.2 averages in the trade name bisphenol F by Honshu Chemical Industry Co.,

[0041]

Ltd., and curing agent 2:1 intramolecular (a hydroxyl equivalent 166 and 93 degrees C of softening temperatures) It is expressed with the following general formula (XIV). The n=1 or more amounts of components in a formula Trade name DPP-L by Nippon Oil chemistry incorporated company, a curing agent 3:82 % of the weight, Phenol novolak resin whose average value of n is 4.0 (a hydroxyl equivalent 106 and 80 degrees C of softening temperatures) The phenol aralkyl resin (a hydroxyl equivalent 176, 70 degrees C of softening temperatures, trade name MIREKKUSU XLC by Mitsui Chemicals, Inc.) which contains a phenolic hydroxyl group by 3.5 averages was prepared for trade name TAMANORU 758 by Arakawa chemical-industry incorporated company, and curing agent 4:1 intramolecular.

[0043] As a hardening accelerator, as the addition reaction object (hardening accelerator 1) of triphenyl phosphine and para benzoquinone, and a coupling agent Gamma-glycidoxypropyltrimetoxysilane (coupling agent: trade name A-187 by Nippon Unicar, Inc.), As an inorganic bulking agent, the mean particle diameter of 25.0 micrometers, the spherical fused silica of specific-surface-area of 3.3m 2/g, as a flame retarder -the bisphenol A mold bromine-ized epoxy resin (epoxy resin 6:Sumitomo Chemical Co., Ltd. make -- trade name ESB-400T --) Carnauba wax (product made from SERARIKA, Inc. NODA) and carbon black (trade name MA[by Mitsubishi Chemical, Inc.]- 100) were prepared as weight per epoxy equivalent 375, 80 degrees C of softening temperatures, 48 % of the weight of bromine contents, an antimony trioxide, and other additives. It blended in the weight section which shows these in Table 1 - 2, respectively, roll kneading was performed on the kneading temperature of 80 degrees C, and the conditions for mixing time 10 minutes, and the epoxy resin molding compound of examples 1-10 and the examples 1-4 of a comparison was produced. In addition, weight % in (B) curing agent whole quantity of Table 1 and the polyfunctional phenol resin to which a "polyfunctional component" contains a phenolic hydroxyl group by three or more averages in intramolecular 2 inside is shown.

[0044] [Table 1]

				_					(単位:重	量部)		
項目	実 施 例											
	1	2	3	4	5	6	7	В	9	10		
エポキン樹脂1	85	85	70	70	70	55	65	50	50	50		
エポキシ樹脂2			15	15				15	15	15		
エポキシ樹脂3					15							
エポキシ樹脂4	1	1				20		20	20			
エポキシ樹脂5							20			20		
エポキシ樹脂6	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15		
硬化剂1	48	28	46	27	28	29	27	28	25	26		
硬化剂2		32		30	29	32	30	31	27	29		
硬化劑3									5			
硬化促進剤1	3.6	3.0	3.6	3.0	3.0	3.4	3.4	3.4	3.4	3.4		
三酸化アンチモン	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0		
カルナパワックス	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0		
カーボンブラック	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2,0	2.0	2.0	2.0	2.0		
カップリング刺	4.5	4.5	4.5	4.5	4.5	4.5	4.5	4.5	4.5	4.5		
溶融シリカ	918	985	908	971	953	991	973	978	969	959		
溶融沙肋含量(wt%)	85	85	85	85	85	85	85	85	85	85		
多官能成分(%)	0	O	٥	0	0	٥	0	0	8	0		

[0045] [Table 2]

			(単位:复	量部)
項目		比更	色矿	
	1	2	3	4
エポキシ樹脂1	85	85	85	
エポキシ樹脂4				85
エポキシ樹脂6	15	15	15	15
硬化剤1			41	
硬化剤3	49		7	52
硬化剂4		82		
硬化促進剂1	2.0	2.0	3.0	3.4
三酸化アンチモン	5.0	5.0	5.0	5.0
カルナバワックス	2.0	2.0	2.0	2.0
カーボンブラック	2.0	2.0	2.0	2.0
カップリング科	4.5	4.5	4.5	4.5
溶融シリカ	918	1102	916	844
溶融沙协含量(wt%)	85	85	85	85
多官能成分(K)	100	100	15	100

[0046] Each following trial estimated the epoxy resin molding compound of the produced example and the example of a comparison. In addition, the transfer-molding machine performed shaping of an epoxy resin molding compound on the die temperature of 180 degrees C, compacting pressure 6.9MPa, and the conditions for setting-time 90 seconds. Moreover, postcure was performed at 180 degrees C for 5 hours. An evaluation result is shown in Table 2.

- (1) Spiral flow (fluid index)
- the spiral flow measurement according to EMMI-1-66 -- public funds -- using the mold, the epoxy resin molding compound was fabricated on the above-mentioned conditions, and flow distance (cm) was found.
- (2) Disk flow (fluid index)
- The monotonous metal mold for disk flow measurement which has the female mold of $15\,\text{mm}$ (H) is used. $200\,\text{mm}\,\text{(W)}$ $x200\,\text{mm}\,\text{(D)}$ x the punch of $25\,\text{mm}$ (H), and $200\,\text{mm}\,\text{(W)}$ $x200\,\text{mm}\,\text{(D)}$ x 5g (epoxy resin molding compound) of samples which carried out weighing capacity is put on the core of the female mold heated at 180 degrees C. After 5 seconds, the punch heated at 180 degrees C was closed, it pressed on the load of 78 Ns, and the conditions for setting-time 90 seconds, the major axis (mm) and minor axis (mm) of mold goods were measured with slide calipers, and the average (mm) was made into the disk flow.
- (3) The degree-of-hardness epoxy resin molding compound was fabricated by the above-mentioned process condition to the disk with a diameter [of 50mm] x thickness of 3mm at the time of heat, and it measured using the Shore D mold hardness meter immediately after shaping.
- (4) Postcure of the disk fabricated by the water absorption above (3) was carried out on the above-mentioned conditions, it was left under the conditions of 85 degrees C / 85%RH for 168 hours, the weight change before and behind neglect was measured, and water absorption was evaluated.
- (5) The thickness from the leadframe top face which carried the silicone chip of 8.6mmx15.0mmx0.28mm thickness on 42 alloy leadframe of chip shift-amount LOC (Lead On Chip) structure to a package top face fabricated and produced TSOP (Thin Small Outline Package) whose thickness from 0.22mm and a chip inferior surface of tongue to a package inferior surface of tongue is 0.28mm on the above-mentioned conditions, and the chip shift amount was calculated from the fracture surface observation. About the chip shift, less than 20 micrometers of shift amounts were made into fitness, and 20 micrometers or more were made into the defect.
- (6) Using the same TSOP as the void yield above (5), fluoroscopy observation was performed on the electrical potential difference of 100kV, and the conditions of 1.5mA of currents, the existence of generating of a void with a diameter of 0.1mm or more was observed, and the software X-ray measuring device (PRO-TESTby SofTek, Inc. 100 mold) estimated with the number of void generating packages / the total number of packages.
- (7) The 216pQFP package (gold streak: the diameter of 27 micrometer, 4.1mm length, 80-micrometer pad pitch) of the dimension the thickness of 24x24x1.4mm which carried the silicone chip of 5.8x5.8x0.3mm thickness on the wire sweep **** leadframe was fabricated and produced on the above-mentioned conditions using the epoxy resin molding compound. The software X-ray measuring device (PRO-TESTby SofTek, Inc. 100 mold) performed

fluoroscopy observation for the obtained package on the electrical potential difference of 100kV, and the conditions of 1.5mA of currents, amount of wire sweeps (amount of flow)/(gold streak merit) (unit %) was measured, and the average of ten package numbers estimated.

(8) Fabricate 80pQFP package of the dimension the thickness of 20x14x2.0mm which carried the silicone chip of 8x10x0.4mm thickness on the reflow-crack-resistance 42 alloy leadframe on the above-mentioned conditions using an epoxy resin molding compound. After performing predetermined time moisture absorption processing for the obtained package by RH 85 degrees C / 85%, IR reflow equipment performed reflow processing on the conditions for 245 degrees C / 15 seconds, the existence of a crack was checked, and the number of crack initiation packages / the total number of packages estimated. [0047]

[Table 3]

項目						実」	E 9 1				
		1	2	3	4	5	6	7	8	8	10
スパイラルフロー(om)		127	109	122	107	99	115	114	113	111	112
円板70-(mm)		95	86	92	85	80	89	90	87	88	88
熱時硬度		80	81	B1	81	80	80	80	80	81	во
吸水率(wtX)		0.21	0.19	0.19	0.18	0.20	0,19	0.19	0.18	0.19	0.18
チバ シフト量		良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好
ポイド発生量*		0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10
ワイヤースウィーブ(%)		1.8	2,1	1.9	2.1	2.8	1.9	1.9	2.0	2.0	2.0
	72h	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10
耐リフロ <i>ー</i> 性≠	96h	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10
	120h	1/10	0/10	1/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10

* 不良数/母数

[0048][Table 4]

項目			此事	2 99	
		1	2	3	4
スパイラルフロー(cm)		76	84	104	122
円板70-(mm)		62	71	82	91
點時硬度		85	83	79	78
吸水平(wt%)		0.24	0.20	0.22	0.22
チップシフト量		不良	不良	不良	良好
ポイド発生量+		10/10	7/10	1/10	0/10
ワイヤースウィーブ(%)		9.4	8.5	4,1	3.2
	72h	10/10	0/10	0/10	0/10
耐リフロー性*	96h	10/10	6/10	0/10	3/10
	120h	10/10	10/10	7/10	10/10

* 不艮数/母数

[0049] The examples 1-10 which use the (B) curing agent specified to this invention are good, and do not have generating of a void, either, it excels in fluidities, such as spiral flow and a disk flow, and it is [a wire sweep also has each small chip shift, and] excellent also in reflow-proof nature so that it may see in Tables 3 and 4. Especially the example 2 which is using the curing agent 2 together as a (B) curing agent component, and 4-10 are excellent in reflow crack resistance. On the other hand, in the examples 1-4 of a comparison which do not contain the (B) curing agent specified to this invention, it is inferior to a chip shift, a void yield, a wire sweep, or reflow-proof nature as compared with the example. [0050]

[Effect of the Invention] If electronic parts, such as IC and LSI, are closed using the epoxy resin molding compound of this invention, since there can be little chip shift and generating of a void also in a thin surface mount mold package like TSOP, the outstanding wire sweep nature and reflow-proof nature can be shown and reliable electronic-parts equipment can be obtained, the industrial value is size.

[Translation done.]

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出顧公開番号 特開2003-292583 (P2003-292583A)

(43)公開日 平成15年10月15日(2003.10.15)

(51) Int.Cl. ⁷		識別記号	F I デーマコート*(参考)
C 0 8 G	59/62		C 0 8 G 59/62 4 J 0 3 6
	59/24		59/24 4 M 1 O 9
	59/32		59/32
H01L	23/29		H 0 1 L 23/30 R
	23/31		
			審査請求 未請求 請求項の数8 OL (全 16 頁)
(21)出顧番号	}	特顧2002-97748(P2002-97748)	(71)出願人 000004455
			日立化成工業株式会社
(22)出顧日		平成14年3月29日(2002.3.29)	東京都新宿区西新宿2丁目1番1号
			(72)発明者 天童 一良
			茨城県つくば市和台48 日立化成工業株式
			会社総合研究所内
			(72)発明者 赤城 清一
			茨城県つくば市和台48 日立化成工業株式
			会社総合研究所内
			(74)代理人 100083806
			弁理士 三好 秀和 (外7名)
			最終頁に続く

(54)【発明の名称】 エポキシ樹脂成形材料及び電子部品装置

(57)【要約】

【課題】 薄型の表面実装型パッケージにおけるチップシフト、ボイド、ワイヤースウィープの発生が少なく、耐リフロー性に優れたエポキシ樹脂成形材料、及びこのエポキシ樹脂成形材料で封止した素子を備えた電子部品装置を提供しようとするものである。

【解決手段】 (A) エポキシ樹脂、(B) 硬化剤、(C) 硬化促進剤、及び(D) 無機充填剤を必須成分とし、(B) 硬化剤が、下記一般式(I) で示されてn=1以上の成分量が11重量%以下のフェノール樹脂を含有し、かつ、1分子内にフェノール性水酸基を平均で3個以上含有する多官能フェノール樹脂の含有量が(B) 硬化剤全量中に10重量%未満であるエポキシ樹脂成形材料。

【化1】

$$\begin{array}{c|c}
OH & OH \\
\hline
OH & OH \\
\hline
(R)m & (R)m & (R)m
\end{array}$$
(I)

(ここで、Rは水素原子、置換又は非置換の炭素数1~

6のアルキル基を示し、mは0又は $1\sim2$ の整数、nは0又は $1\sim1$ 0の整数を示す。)

【特許請求の範囲】

【請求項1】 (A) エポキシ樹脂、(B) 硬化剤、(C) 硬化促進剤、及び(D) 無機充填剤を必須成分とし、(B) 硬化剤が、下記一般式(I) で示されてn=1以上の成分量が11重量%以下のフェノール樹脂を含有し、かつ、1分子内にフェノール性水酸基を平均で3個以上含有する多官能フェノール樹脂の含有量が(B) 硬化剤全量中に10重量%未満であるエポキシ樹脂成形材料。

1

[化 1]
$$OH \qquad OH \qquad OH$$

$$(R)m \qquad (R)m \qquad (R)m \qquad (R)m \qquad (R)m$$

(ここで、Rは水素原子、置換又は非置換の炭素数1~6のアルキル基を示し、mは0又は1~2の整数、nは0又は1~10の整数を示す。)

【請求項2】 (B) 硬化剤が下記一般式 (II) で示さ*

 $\begin{array}{c|c}
(\text{H} 2) \\
\text{OH} \\
\text$

* れるジシクロペンタジエン型フェノール樹脂を含有する

請求項1記載のエポキシ樹脂成形材料。

(ここで、 R^{1} 及び R^{2} は水素原子及び炭素数 $1 \sim 6$ のアルキル基からそれぞれ独立して選ばれ、m個全てが同一)でも異なっていてもよい。mは 0 又は $1 \sim 6$ の整数を示し、n は 0 又は $1 \sim 1$ 0 の整数を示す。)

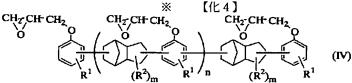
【請求項3】 一般式(II)で示されるジシクロペンタジエン型フェノール樹脂のnの平均値が0以上0.5未満である請求項2記載のエポキシ樹脂成形材料。

【請求項4】 (A) エポキシ樹脂が下記一般式(II I) で示されるエポキシ樹脂を含有する請求項1~3記載のエポキシ樹脂成形材料。

(A)が下記一般式 (II) で示さ* 【化3】
CH₂-CH-CH₂ CH₂-CH-CH₂ CH₂-CH-CH₂ CH₂-CH-CH₂ (III) CH₂ (IIII) CH₂ (III) CH₂ (III) CH₂ (III) CH₂ (III) CH₂ (III) CH₂ (III) CH₂ (I

(ここで、Rは水素原子、置換又は非置換の炭素数 $1 \sim 6$ のアルキル基を示し、m個全でが同一でも異なっていてもよい。mは 0 又は $1 \sim 1$ 0 の整数を示す。)

※【請求項5】 (A) エポキシ樹脂が下記一般式(IV) で示されるエポキシ樹脂を含有する請求項1~4記載のエポキシ樹脂成形材料。



(ここで、R 1 B 2

★【請求項6】 (A) エポキシ樹脂が下記一般式(V) で示されるエポキシ樹脂を含有する請求項1~5記載のエポキシ樹脂成形材料。

○の整数を示す。) ★ 【化5】

(R¹)m R² (R¹)m OH (R¹)m R² (R¹)m

(CH₂CH CH₂ (O) CH₂CH CH₂ O CH₂CH CH₂ (V) R¹ CH CH₂ (V)

(ここで、 R^1 は水素原子、置換又は非置換の炭素数 $1 \sim 6$ のアルキル基から選ばれ、全てが同一でも異なっていてもよい。 R^2 及び R^3 は水素原子、置換又は非置換の炭素数 $1 \sim 1$ 2 の炭化水素基を示し、mは 0 又は $1 \sim 4$ の整数を示し、n は 0 又は $1 \sim 5$ の整数を示す。)

【請求項7】 (A) エポキシ樹脂が硫黄原子含有エポキシ樹脂及びビフェニル型エポキシ樹脂の少なくとも一方を含有する請求項1~6記載のエポキシ樹脂成形材料。

【請求項8】 請求項1~7のいずれかに記載のエポキシ樹脂成形材料により封止された素子を備えた電子部品 50

40 装置。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】本発明は、流動性に優れ、薄型の表面実装型パッケージにおけるチップシフトの発生やワイヤースウィープ量が少なく、耐リフロー性に優れたエポキシ樹脂成形材料、及びこのエポキシ樹脂成形材料で封止した素子を備えた電子部品装置に関する。

[0002]

【従来の技術】従来から、トランジスタ、IC等の電子 部品封止の分野ではエポキシ樹脂成形材料が広く用いら れている。この理由としては、エポキシ樹脂が電気特 性、耐湿性、耐熱性、機械特性、インサート品との接着 性などの諸特性にバランスがとれているためである。特 に、オルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂とフェ ノールノボラック硬化剤の組み合わせはこれらのバラン スに優れており、封止用成形材料のベース樹脂の主流に なっている。近年では、電子部品のプリント配線板への 高密度実装化に伴い、電子部品装置は従来のピン挿入型 から、表面実装型のパッケージが主流になってきてい る。表面実装型のIC、LSI等は、実装密度を高くし て実装高さを低くするために、薄型、小型のパッケージ になっており、素子のパッケージに対する占有体積が大 きくなり、パッケージの肉厚は非常に薄くなってきた。 特にTSOP (Thin Small Outline Package)、TQF P (Thin Quad Flat Package) 等の肉厚が非常に薄いパ ッケージでは、封止用のエポキシ樹脂成形材料の流動性 が低い場合、成形時にチップシフトが発生し、これらの シフトによりボイドが発生したり、上下のエポキシ樹脂 成形材料の肉厚のバランスが崩れ、耐リフロー性を低下 させる要因となってしまう。また、実装密度の増大にと もなってパッケージ当たりのピン数が増加するため、パ ッケージ内部で素子とリードの接続に使用される金線も 長く、それらのピッチも狭くなってきた。そのためエポ キシ成形材料の流動性が低い場合、金線の変形(ワイヤ ースウィープ) を引き起こし、金線同士の接触や断線等 による動作不良の要因となってしまう。そこで、エポキ シ樹脂成形材料の流動性を向上させる検討が行われてい るが十分な解決には至っていない。

[0003]

【発明が解決しようとする課題】本発明はかかる状況に鑑みなされたもので、流動性に優れ、薄型の表面実装型パッケージにおけるチップシフト、ボイド、ワイヤースウィープの発生が少なく、耐リフロー性に優れたエポキシ樹脂成形材料、及びこのエポキシ樹脂成形材料で封止した素子を備えた電子部品装置を提供しようとするものである。

[0004]

【課題を解決するための手段】本発明者らは、上記の課題を解決するために鋭意検討を重ねた結果、特定構造の硬化剤を配合したエポキシ樹脂成形材料により上記の目*40

* 的を達成しうることを見いだし、本発明を完成するに至った。

【0005】すなわち、本発明は、(1) (A) エポキシ樹脂、(B) 硬化剤、(C) 硬化促進剤、及び(D) 無機充填剤を必須成分とし、(B) 硬化剤が、下記一般式(I) で示されてn=1以上の成分量が11重量%以下のフェノール樹脂を含有し、かつ、1分子内に

量%以下のフェノール樹脂を含有し、かつ、1分子内にフェノール性水酸基を平均で3個以上含有する多官能フェノール樹脂の含有量が(B)硬化剤全量中に10重量%未満であるエポキシ樹脂成形材料に関する。

 $\begin{array}{c}
\text{(H 6]} \\
\text{OH} \\
\text{OH} \\
\text{OH}
\end{array}$ $\begin{array}{c}
\text{OH} \\
\text{OH} \\
\text{(R)m}
\end{array}$ $\begin{array}{c}
\text{OH} \\
\text{OH} \\
\text{(R)m}
\end{array}$ $\begin{array}{c}
\text{OH} \\
\text{(R)m}
\end{array}$ $\begin{array}{c}
\text{(I)} \\
\text{(R)} \\
\text{(R)}$

ただし、一般式(I)で、Rは水素原子、置換又は非置 換の炭素数1~6のアルキル基を示し、mは0又は1~ 2の整数、nは0又は1~10の整数を示す。

【0006】(2) 上記(1)記載のエポキシ樹脂成形材料において、(B)硬化剤が下記一般式(II)で示されるジシクロペンタジエン型フェノール樹脂を含有するのが好ましい。

$$(R^2)_{\mathbf{m}} \xrightarrow{\mathrm{OH}} (R^2)_{\mathbf{m}} (R^2)_{$$

ただし、一般式 (II) で、 R^{1} 及び R^{2} は水素原子及び炭素数 $1\sim6$ のアルキル基からそれぞれ独立して選ばれ、m個全てが同一でも異なっていてもよい。mは 0 又は $1\sim6$ の整数を示し、nは 0 又は $1\sim1$ の整数を示す。 【0007】(3) 上記(2)記載のエポキシ樹脂成形材料において、一般式(II)で示されるジシクロペンタジエン型フェノール樹脂のnの平均値が0 以上0.5未満であるのが好ましい。

【0008】(4) 上記(1) \sim (3) のいずれか記載のエポキシ樹脂成形材料において、(A) エポキシ樹脂が下記一般式(III)で示されるエポキシ樹脂を含有するのが好ましい。

(3)

ただし、一般式(III)で、Rは水素原子、置換又は非置換の炭素数 $1 \sim 6$ のアルキル基を示し、m個全でが同一でも異なっていてもよい。mは0 又は $1 \sim 2$ の整数を示し、nは0 又は $1 \sim 1$ 0 の整数を示す。

【0009】(5) 上記(1)~(4)のいずれか記 50

載のエポキシ樹脂成形材料において、(A)エポキシ樹脂が下記一般式(IV)で示されるエポキシ樹脂を含有するのが好ましい。

【化9】

$$\begin{array}{c} CH_{Z}CH^{2}CH^{$$

ただし、一般式(IV)で、 R^1 及び R^2 は水素原子及び炭素数 $1\sim6$ のアルキル基からそれぞれ独立して選ばれ、m個全てが同一でも異なっていてもよい。mは 0 又は $1\sim6$ の整数を示し、n は 0 又は $1\sim1$ 0 の整数を示す。

*【0010】(6) 上記(1)~(5)のいずれか記載のエポキシ樹脂成形材料において、(A)エポキシ樹脂が下記一般式(V)で示されるエポキシ樹脂を含有するのが好ましい。

ただし、一般式(V)で、 R^1 は水素原子、置換又は非置換の炭素数 $1\sim6$ のアルキル基から選ばれ、全てが同一でも異なっていてもよい。 R^2 及び R^3 は水素原子、置換又は非置換の炭素数 $1\sim1$ 2の炭化水素基を示し、mは 0又は $1\sim4$ の整数を示し、n は 0又は $1\sim5$ の整数を示す。

【0011】(7) 上記(1)~(6)のいずれか記 20 載のエポキシ樹脂成形材料において、(A)エポキシ樹 脂が硫黄原子含有エポキシ樹脂及びビフェニル型エポキ シ樹脂の少なくとも一方を含有するのが好ましい。

【0012】また、本発明は、上記(1)~(7)のいずれかに記載のエポキシ樹脂成形材料により封止された素子を備えた電子部品装置に関する。

[0013]

【発明の実施の形態】本発明において用いられる(A) エポキシ樹脂は、封止用のエポキシ樹脂組成物に一般に 使用されているもので特に制限はない。たとえば、フェ 30 ノールノボラック型エポキシ樹脂、オルソクレゾールノ ボラック型エポキシ樹脂、トリフェニルメタン骨格を有 するエポキシ樹脂をはじめとするフェノール、クレゾー ル、キシレノール、レゾルシン、カテコール、ビスフェ ノールA、ビスフェノールF等のフェノール類及び/又 $i\alpha$ ーナフトール、β ーナフトール、ジヒドロキシナフ タレン等のナフトール類とホルムアルデヒド、アセトア ルデヒド、プロピオンアルデヒド、ベンズアルデヒド、 サリチルアルデヒド等のアルデヒド基を有する化合物と を酸性触媒下で縮合又は共縮合させて得られるノボラッ ク樹脂をエポキシ化したノボラック型エポキシ樹脂;ビ スフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールS 等のビスフェノールのジグリシジルエーテル (ビスフェ※

※ノール型エポキシ樹脂);アルキル置換又は非置換のビ フェノール等のジグリシジルエーテル(ビフェニル型エ ポキシ樹脂);スチルベン型エポキシ樹脂;ハイドロキ ノン型エポキシ樹脂;フタル酸、ダイマー酸等の多塩基 酸とエピクロルヒドリンの反応により得られるグリシジ ルエステル型エポキシ樹脂;ジアミノジフェニルメタ ン、イソシアヌル酸等のポリアミンとエピクロルヒドリ ンの反応により得られるグリシジルアミン型エポキシ樹 脂;ジシクロペンタジエンとフェノール類の共縮合樹脂 のエポキシ化物(ジシクロペンタジエン型エポキシ樹 脂);ナフタレン環を有するエポキシ樹脂(ナフタレン 型エポキシ樹脂);フェノール・アラルキル樹脂、ナフ トール・アラルキル樹脂等のアラルキル型フェノール樹 脂のエポキシ化物;トリメチロールプロパン型エポキシ 樹脂;テルペン変性エポキシ樹脂;オレフィン結合を過 酢酸等の過酸で酸化して得られる線状脂肪族エポキシ樹 脂;脂環族エポキシ樹脂;硫黄原子含有エポキシ樹脂等 が挙げられる。これらを単独で用いても2種以上を組み 合わせて用いてもよい。なかでも、硬化性の観点からは ノボラック型エポキシ樹脂が好ましく、低吸湿性の観点 からはジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂を含有する ことが好ましく、耐リフロー性及びワイヤースウィープ の観点からはビスフェノールのジグリシジルエーテル (ビスフェノール型エポキシ樹脂)、硫黄原子含有エポ キシ樹脂又はビフェニル型エポキシ樹脂を含有すること が好ましい。

【0014】ノボラック型エポキシ樹脂としては、たとえば下記一般式(III)で示されるエポキシ樹脂等が挙げられる。

「リシジルエーテル(ビスフェ※ 【化 1 】 CH_{2} CH 2 CH 2

てもよい。mは0又は1~2の整数を示し、nは0又は1~10の整数を示す。)

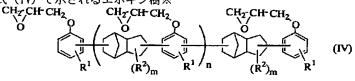
7

上記一般式(III)で示されるノボラック型エポキシ樹脂は、ノボラック型フェノール樹脂にエピクロルヒドリンを反応させることによって容易に得られる。なかでも、一般式(III)中のRとしては、水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、イソプロピル基、イソプチル基、t-ブチル基等の炭素数1~6のアルキル基が好ましく、水素原子又はメチル基がより好ましく、メチル基がさらに好ましい。mは0又は1が好ましく、1がより好ましい。nは0又は1~5の整数が好ま*

* しい。上記一般式 (III) で示されるノボラック型エポキシ樹脂の好ましい構造としては、たとえば下記一般式 (VI) で示されるオルトクレゾールノボラック型エポキシ樹脂が挙げられる。ノボラック型エポキシ樹脂を使用する場合の配合量は、その性能を発揮するためにエポキシ樹脂全量に対して20重量%以上とすることが好ましく、30重量%以上がより好ましく、40重量%以上が さらに好ましい。

は 0 又は 1~5 の整数が好ま* 【化 1 2】 CH₂ CH-CH₂ CH₂ CH-CH₂ CH₂ CH-CH₂ CH₃ O CH₃ O CH₃ CH₂ CH₃ (VI)

(ここで、nは0又は1~5の整数を示す。) 【0015】ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂としては、たとえば下記一般式(IV)で示されるエポキシ樹※ ※ 脂等が挙げられる。
【化13】



(ここで、 R^1 及び R^2 は水素原子及び炭素数 $1\sim6$ のアルキル基からそれぞれ独立して選ばれ、m個全てが同一でも異なっていてもよい。mは0又は $1\sim6$ の整数を示し、nは0又は $1\sim1$ 0の整数を示す。)

上記式 (IV) 中のR としては、たとえば、水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、イソプロピル基、イソブチル基、tーブチル基等の炭素数1~6のアルキル基が挙げられ、なかでもメチル基、エチル基等のアルキル基及び水素原子が好ましく、メチル基及び水素原子がより好ましい。R²としては、たとえば、水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、イソプロピル基、イソブチル基、tーブチル基等の炭素★

★数1~6のアルキル基が挙げられ、なかでも水素原子が 好ましい。mは0又は1が好ましく、0がより好まし い。mは0又は1~5の整数が好ましい。上記一般式 (IV)で示されるジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂 の好ましい構造としては、たとえば下記一般式 (VII) で示されるジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂が挙げ られる。ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂を使用す る場合の配合量は、その性能を発揮するためにエポキシ 樹脂全量に対して1~30重量%とすることが好まし く、5~20重量%がより好ましい。

【化14】

アル基、(一)テル 語等の 灰 条 CH₂-CH-CH₂ CH₂-CH-CH₂ CH₂-CH-CH₂ CH₂-CH-CH₂ (VII)

(ここで、nは0又は1を示す。)

【0016】ビスフェノールのジグリシジルエーテル (ビスフェノール型エポキシ樹脂)としては、たとえば☆

☆下記一般式(V)で示されるエポキシ樹脂等が挙げられ 40 る。

(ここで、 R^1 は水素原子、置換又は非置換の炭素数 $1 \sim 6$ のアルキル基から選ばれ、全てが同一でも異なっていてもよい。 R^2 及び R^3 は水素原子、置換又は非置換の炭素数 $1 \sim 1$ 2 の炭化水素基を示し、mは 0 又は $1 \sim 4$ の整数を示し、n は 0 又は $1 \sim 5$ の整数を示す。)上記一般式(V)中の R^1 としては、たとえば、水素原

子、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、イソプロピル基、t ーブチル基等の炭素数 1 ~6のアルキル基が挙げられ、なかでもメチル基、エチル基等のアルキル基及び水素原子が好ましく、メチル基及び水素原子がより好ましい。 R^2 及び R^3 としては、たとえば、水素原50 子、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、イソ

プロピル基、イソブチル基、 t - ブチル基等の炭素数 1 ~6のアルキル基、ビニル基、アリル基、ブテニル基等 のアルケニル基、フェニル基、ビフェニル基、1-ナフ チル基、2-ナフチル基等のアリール基、o-トリル 基、m-トリル基、p-トリル基、2、3-キシリル 基、2、4-キシリル基、o-クメニル基、m-クメニ ル基、p-クメニル基、メシチル基等のアルキル基置換 アリール基、ハロゲン化アルキル基、アミノ基置換アル キル基、メルカプト基置換アルキル基などの炭素数1~ 12の置換又は非置換の一価の炭化水素基が挙げられ、 なかでも水素原子、メチル基、エチル基、フェニル基、* * ビフェニル基が好ましく、メチル基及びフェニル基がよ り好ましい。mはO、1又は2が好ましく、Oがより好 ましい。nは0又は1~3の整数が好ましい。上記一般 式(V)で示されるビスフェノールのジグリシジルエー テルの好ましい構造としては、たとえば下記一般式 (VI II) 及び(IX)で示されるエポキシ樹脂が挙げられる。ビ スフェノールのジグリシジルエーテルを使用する場合の 配合量は、その性能を発揮するためにエポキシ樹脂全量 に対して1~30重量%とすることが好ましく、5~2 0重量%がより好ましい。

【化16】

$$CH_{2}CH - CH_{2} - CH_{3}CH - CH_{2}CH_{2}CH_{2}CH_{2}CH_{2}CH_{3}CH_{2}CH_$$

(ここで、nは0又は1~3の整数を示す。)

(ここで、nは0又は1~3の整数を示す。)

【0017】硫黄原子含有エポキシ樹脂としては例えば 下記一般式(X)で示されるエポキシ樹脂等が挙げられ★

20★る。

【化18】

ρн о-си²сиси³—° (1₂)

(ここで、R¹は水素原子及び置換又は非置換の炭素数1 ~6のアルキル基から選ばれ、全てが同一でも異なって いてもよい。mは0又は1~4の整数を示し、nは0又 は1~3の整数を示す。)

上記一般式(X)中のR'としては、たとえば、水素原 子、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、イソ プロピル基、イソブチル基、 t ーブチル基等の炭素数 1 ~6のアルキル基が挙げられ、なかでも水素原子及びメ☆

☆チル基、エチル基、プロピル基、t-ブチル基が好まし く、水素原子、メチル基及び t ーブチル基がより好まし い。mは0、1又は2が好ましく、2がより好ましい。 nは0、1又は2が好ましい。上記一般式(X)で示さ 30 れる硫黄原子含有エポキシ樹脂の好ましい構造として は、たとえば下記一般式(XI)で示されるエポキシ樹脂が 挙げられる。

【化19】

(ここで、nは0、1及び2を示す。)

硫黄原子含有エポキシ樹脂を使用する場合の配合量は、 その性能を発揮するためにエポキシ樹脂全量に対して1 ~40重量%とすることが好ましく、10~30重量% がより好ましい。

◆【0018】ビフェニル型エポキシ樹脂としてはたとえ 40 ば下記一般式(XII)で示されるエポキシ樹脂等が挙げ られる。

【化20】

(ここで、R¹は水素原子及び置換又は非置換の炭素数1 ~6のアルキル基から選ばれ、全てが同一でも異なって いてもよい。mは0又は1~4の整数を示し、nは0又 50 子、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、イソ

は1~3の整数を示す。)

上記一段式(XII)中のR'としては、たとえば、水素原

12

プロピル基、イソブチル基、t - ブチル基等の炭素数 1 ~ 6のアルキル基が挙げられ、なかでも水素原子及びメチル基、エチル基が好ましく、水素原子及びメチル基がより好ましい。mは 0、 1 又は 2 が好ましい。2 がより好ましい。1 と記一般式 *

11

(ここで、nは0、1及び2を示す。)

ビフェニル型エポキシ樹脂を使用する場合、その配合量 10 は、その性能を発揮するためにエポキシ樹脂全量に対して1~40重量%とすることが好ましく、10~30重量%がより好ましい。

【0019】上記のノボラック型エポキシ樹脂、ジシク ロペンタジエン型エポキシ樹脂、ビフェノールのジグリ シジルエーテル、硫黄原子含有エポキシ樹脂、ビフェニ ル型エポキシ樹脂の配合量はエポキシ樹脂全量に対して 合わせて50重量%以上とすることが好ましく、60重 量%以上がより好ましく、80重量%以上がさらに好ま しい。さらに、上記したエポキシ樹脂を併用する場合の 20 割合は、(ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂、ビフ ェノールのジグリシジルエーテル、硫黄原子含有エポキ シ樹脂、ビフェニル型エポキシ樹脂)の総量/(ノボラ ック型エポキシ樹脂)の重量比が1/5~4/1である ことが好ましく、1/4~3/1がより好ましく、1/ 3~2/1がさらに好ましい。(ジシクロペンタジエン 型エポキシ樹脂、ビフェノールのジグリシジルエーテ ル、硫黄原子含有エポキシ樹脂及びビフェニル型エポキ シ樹脂)の総量の割合が多くなりすぎると熱時硬度が低 下する傾向にあり、ノボラック型エポキシ樹脂の割合が 30 多くなり過ぎると耐リフロー性が低下する傾向にある。 【0020】本発明において用いられる(B)硬化剤 は、少なくとも、下記一般式(I)で示されるフェノー ル樹脂を含有し、一般式(I)におけるn=1以上の成 分量が一般式(I)で示されるフェノール樹脂中に 1 1 重量%以下であり、かつ、1分子内にフェノール性水酸 基を平均で3個以上含有する多官能フェノール成分の含 有量が(B)硬化剤全量中に10重量%未満であればよ く、それ以外に封止用のエポキシ樹脂成形材料に一般に 使用されているものを併用することもできる。

【化22】

(ここで、R は水素原子、置換又は非置換の炭素数 $1\sim6$ のアルキル基を示し、m は 0 又は $1\sim2$ の整数、n は 0 又は $1\sim1$ 0 の整数を示す。)

【0021】上記一般式(I)中のRとしては、たとえば、水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、プチ 50

* (XII) で示されるビフェニル型エポキシ樹脂の好ましい構造としては、たとえば下記一般式(XIII)で示される エポキシ樹脂が挙げられる。

の炭素数 $1 \sim 6$ のアルキル基が挙げられ、なかでも水素原子、メチル基及びエチル基が好ましく、水素原子及びメチル基がより好ましい。mは0、1又は2が好ましく、0がより好ましい。nは0、1又は2が好ましい。-般式(I)で示されるフェノール樹脂の好ましい構造としては、たとえば、下記一般式(XIV)で示されるフェノール樹脂が挙げられる。

ル基、イソプロピル基、イソブチル基、t-ブチル基等

(化23] OH OH OH OH CH₂ (XIV)

上記一般式(I)で示されるフェノール樹脂は、nが0又は1~10の整数で示される構造を構成成分としているが、それらの割合としてn=1以上の成分量が一般式(I)で示されるフェノール樹脂全体の11重量%以下であり、10重量%以下が好ましく、5重量%以下がより好ましい。11重量%より大きいと流動性、耐リフロー性及びワイヤースウィープ性が低下する傾向にある。一般式(I)で示されるフェノール樹脂のn=1以上の構成成分量は、従来公知の方法によって求めることができ、たとえば、ゲルパーミエーションクロマトグラフで測定した面積比から求めることができる。

【0022】本発明の効果を得るためには、一般式

(I)で示されるフェノール樹脂中のn=0の成分量が重要であり、それらは下記一般式 (XV) \sim (XVII)で示される異性体構造をとることができる。これら異性体の比率は特に限定されるものではないが、一般式 (I)で示されるフェノール樹脂中のn=0の成分全量中に、一般式 (XVII)で示される構造が $10\sim60$ 重量%であることが好ましく、 $20\sim40$ 重量%であることがより好ましい。10 重量%より少ないとフェノール樹脂の軟化点が低くなり作業性が低下する傾向にあり、60 重量%より多くなるとフェノール樹脂の軟化点が高くなりエポキシ樹脂成形材料中での分散が不十分になる傾向がある

【化24】

【化25】

13

【0023】本発明の(B)硬化剤として前記一般式 (1)で示されるフェノール樹脂に併用できる硬化剤と しては、封止用のエポキシ樹脂組成物に一般に使用され ているもので特に制限はない。たとえば、フェノール、 クレゾール、レゾルシン、カテコール、ビスフェノール A、フェニルフェノール、アミノフェノール等のフェノ ール類及び/又は α ーナフトール、 β ーナフトール、ジ ヒドロキシナフタレン等のナフトール類とホルムアルデ ヒド、アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド、ベン ズアルデヒド、サリチルアルデヒド等のアルデヒド基を 有する化合物とを酸性触媒下で縮合又は共縮合させて得 られるノボラック型フェノール樹脂;フェノール類及び /又はナフトール類とジメトキシパラキシレン又はビス (メトキシメチル) ビフェニルから合成されるフェノー ル・アラルキル樹脂、ナフトール・アラルキル樹脂等の アラルキル型フェノール樹脂:フェノール類及び/又は ナフトール類とシクロペンタジエンから共重合により合 成される、ジシクロペンタジエン型フェノール樹脂、ジ シクロペンタジエン型ナフトール樹脂;テルペン変性フ ェノール樹脂:ビフェニル型フェノール樹脂:トリフェ ニルメタン型フェノール樹脂などが挙げられ、これらを 単独で用いても2種以上を組合わせて用いてもよい。な かでも、低吸湿性の観点からはジシクロペンタジエン型 フェノール樹脂が好ましい。

【0024】ジシクロペンタジエン型フェノール樹脂と しては、たとえば下記一般式(II)で示されるフェノー ル樹脂等が挙げられる。

[
$$(E \ 2 \ 7)$$
]
OH
$$(R^2)_m$$

$$(R^2)_m$$
OH
$$(R^2)_m$$
OH
$$(R^2)_m$$
OH
$$(R^3)_m$$
OH
$$(R^3)_m$$
OH
$$(R^3)_m$$
OH
$$(R^3)_m$$
OH
$$(R^3)_m$$
OH

30

(ここで、nは0又は1~10の整数を示す。) ジシクロペンタジエン型フェノール樹脂を用いる場合、 その配合量は、その性能を発揮するために硬化剤全量に 対して20~80重量%とすることが好ましく、30~ 70重量%以上がより好ましく、40~65重量%がさ らに好ましい。20重量%より少ない場合は、添加効果 が十分に発揮されず、80重量%より多い場合は流動性 が低下する傾向にある。

*(ここで、 R^1 及び R^2 は水素原子及び炭素数 $1\sim6$ のア ルキル基からそれぞれ独立して選ばれ、m個全てが同一 でも異なっていてもよい。mは0又は1~6の整数を示 し、nは0又は1~10の整数を示す。) 上記一般式(II)中のR[']及びR²としては、たとえば、 水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル 基、イソプロピル基、イソブチル基、tーブチル基等の 炭素数1~6のアルキル基が挙げられ、なかでも水素原 子及びメチル基が好ましく、水素原子がより好ましい。 nはO又は1~10の整数を任意に取ることができる が、n=1以上の整数で表される成分量が一般式(II) 中の30重量%以下であることが好ましく、20重量% 以下がより好ましい。30重量%より多いと流動性が低 下する傾向にある。また、上記一般式(II)で示される ジシクロペンタジエン型フェノール樹脂に含まれる各成 分のnを一般式(II)で示されるジシクロペンタジエン 型フェノール樹脂全体で平均した場合、 n の平均は 0 以 上0.5未満が好ましく、0~0.4がより好ましく、 0~0. 3がさらに好ましい。ここで、nの平均が0の 場合、上記一般式(II)で示されるジシクロペンタジエ ン型フェノール樹脂は2官能成分のみから構成されてい ることを示し、nの平均が1の場合、上記一般式(II) で示されるジシクロペンタジエン型フェノール樹脂は全 体として3官能性のフェノール樹脂として考えることが できる。 n の平均が 0. 5以上であると、流動性が低下 する傾向がある。

【0025】上記一般式(II)で示されるジシクロペン タジエン型フェノール樹脂の軟化点としては、特に制限 なく用いることができるが、本発明のエポキシ樹脂成形 材料中に均一に混合するためには、40℃~110℃の 範囲であることが好ましく、さらに耐リフロー性の観点 からは50℃~90℃が好ましい。一般式(II)で示さ れるジシクロペンタジエン型フェノール樹脂の好ましい 構造としては、たとえば下記一般式(XVIII)で示され るジシクロペンタジエン型フェノール樹脂が挙げられ る。

【化28】

【0026】(A) エポキシ樹脂と(B) 硬化剤との当 量比、すなわち、エポキシ樹脂中のエポキシ基数に対す る硬化剤中の水酸基数の比(硬化剤中の水酸基数/エポ キシ樹脂中のエポキシ基数)は、特に制限はないが、そ れぞれの未反応分を少なく抑えるために 0.5~2の範 囲に設定されることが好ましく、0.6~1.3がより 好ましい。成形性及び耐半田リフロー性に優れるエポキ 50 シ樹脂成形材料を得るためには 0.8~1.2の範囲に 設定されることがさらに好ましい。

【0027】本発明において用いられる(C)硬化促進 剤としては、エポキシ樹脂成形材料で一般に使用されて いるもので特に制限はないが、たとえば、1,8-ジア ザビシクロ [5. 4. 0] ウンデセンー7、1, 5ージ アザビシクロ[4.3.0] ノネンー5、5,6ージブ チルアミノー1,8-ジアザビシクロ[5.4.0]ウ ンデセンー7等のシクロアミジン化合物及びこれらの化 合物に無水マレイン酸、1,4-ベンゾキノン、2,5 ートルキノン、1, 4ーナフトキノン、2, 3ージメチ 10 ルベンゾキノン、2,6-ジメチルベンゾキノン、2, 2, 3ージメトキシー1, 4ーベンゾキノン、フェニル -1. 4-ベンゾキノン等のキノン化合物、ジアゾフェ ニルメタン、フェノール樹脂等のπ結合をもつ化合物を 付加してなる分子内分極を有する化合物、ベンジルジメ チルアミン、トリエタノールアミン、ジメチルアミノエ タノール、トリス (ジメチルアミノメチル) フェノール 等の三級アミン類及びこれらの誘導体、2-メチルイミ ダゾール、2ーフェニルイミダゾール、2一フェニルー 4-メチルイミダゾール、2-ヘプタデシルイミダゾー ル等のイミダゾール類及びこれらの誘導体、トリブチル ホスフィン、メチルジフェニルホスフィン、トリフェニ ルホスフィン、トリス(4-メチルフェニル)ホスフィ ン、ジフェニルホスフィン、フェニルホスフィン等の有 機ホスフィン類及びこれらのホスフィン類に無水マレイ ン酸、上記キノン化合物、ジアゾフェニルメタン、フェ ノール樹脂等の π 結合をもつ化合物を付加してなる分子 内分極を有するリン化合物、テトラフェニルホスホニウ ムテトラフェニルボレート、テトラフェニルホスホニウ 30 ムエチルトリフェニルボレート、テトラブチルホスホニ ウムテトラブチルボレート等のテトラ置換ホスホニウム ・テトラ置換ボレート、2-エチル-4-メチルイミダ ゾール・テトラフェニルボレート、N-メチルモルホリ ン・テトラフェニルボレート等のテトラフェニルボロン 塩及びこれらの誘導体などが挙げられ、これらの1種を 単独で用いても2種以上組み合わせて用いてもよい。な かでも、硬化性及び流動性の観点からは第三ホスフィン とキノン化合物との付加物が好ましく、保存安定性の観 点からはシクロアミジン化合物とフェノール樹脂との付 40 加物が好ましく、ジアザビシクロウンデセンのフェノー ルノボラック樹脂塩がより好ましい。これらの硬化促進 剤の配合量は硬化促進剤全量に対して合わせて60重量 %以上が好ましく、80重量%以上がより好ましい。

【0028】第三ホスフィンとキノン化合物との付加物に用いられる第三ホスフィンとしては特に制限はないが、たとえば、トリブチルホスフィン、トリシクロヘキシルホスフィン、ジブチルフェニルホスフィン、ブチルジフェニルホスフィン、トリフェニルホスフィン、トリフェニルホスフィン、トリフェニルホスフィン、トリフェニルホスフィン、トリフェニルホスフィン、トリフェニルホスフィン、トリフェニルホスフィン、トリフェニルホスフィン、トリス(4-メチルフェニ

ル) ホスフィン、トリス (4-エチルフェニル) ホスフ ィン、トリス(4-プロピルフェニル)ホスフィン、ト リス(4-ブチルフェニル)ホスフィン、トリス(イソ プロピルフェニル) ホスフィン、トリス (tーブチルフ ェニル) ホスフィン、トリス(2,4-ジメチルフェニ ル) ホスフィン、トリス(2,6-ジメチルフェニル) ホスフィン、トリス(2,4,6-トリメチルフェニル) ホスフィン、トリス(2,6-ジメチル-4-エトキシ フェニル) ホスフィン、トリス(4-メトキシフェニ ル) ホスフィン、トリス (4-エトキシフェニル) ホス フィン等のアリール基を有する第三ホスフィンが挙げら れ、成形性の点からはトリフェニルホスフィン又はトリ ス(4-メチルフェニル) ホスフィンが好ましい。ま た、第三ホスフィンとキノン化合物との付加物に用いら れるキノン化合物としては特に制限はないが、たとえ ば、oーベンゾキノン、pーベンゾキノン、ジフェノキ ノン、1, 4-ナフトキノン、アントラキノン等が挙げ られ、流動性の観点からはpーベンゾキノンが好まし W

【0029】硬化促進剤の配合量は、硬化促進効果が達成される量であれば特に限定されるものではないが、(A)エポキシ樹脂と(B)硬化剤の合計量100重量部に対して0.1~10重量部が好ましく、0.3~5重量部がより好ましい。0.1重量部未満では短時間で硬化させることが困難となり、10重量部を超えると硬化速度が早すぎて良好な成形品が得られない傾向がある。

【0030】本発明において用いられる(D)無機充填 剤は、吸湿性、線膨張係数低減、熱伝導性向上及び強度 向上のためにエポキシ樹脂成形材料に配合されるもので あり、例えば、溶融シリカ、結晶シリカ、アルミナ、ジ ルコン、珪酸カルシウム、炭酸カルシウム、チタン酸カ リウム、炭化珪素、窒化珪素、窒化アルミ、窒化ホウ 素、ベリリア、ジルコニア、ジルコン、フォステライ ト、ステアタイト、スピネル、ムライト、チタニア等の 粉体、又はこれらを球形化したビーズ、ガラス繊維など が挙げられ、これらの1種を単独で用いても2種以上を 組合わせて用いてもよい。さらに、難燃効果のある無機 充填剤としては水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウ ム、硼酸亜鉛、モリブデン酸亜鉛、マグネシウムと亜鉛 の複合水酸化物等の複合金属水酸化物などが挙げられ、 これらの1種を単独で用いても2種以上を組合わせて用 いてもよい。なかでも、線膨張係数低減の観点からは溶 融シリカが、高熱伝導性の観点からはアルミナが好まし い。充填剤の形状は、成形時の流動性又は金型摩耗性の 点からは球形又は球状に近い形が好ましい。(D)無機 充填剤の配合量は、成形性、吸温性、線膨張係数の低減 及び強度向上の観点から、エポキシ樹脂成形材料に対し て70重量%以上が好ましく、80重量%より多く95 50 重量%以下がより好ましい。70重量%未満では耐リフ

ロークラック性が低下する傾向があり、95重量%を超 えると流動性が不足する傾向がある。

【0031】また、本発明のエポキシ樹脂成形材料に は、樹脂成分と無機充填剤との接着性を高めるために、 必要に応じて、エポキシシラン、メルカプトシラン、ア ミノシラン、アルキルシラン、メタクリルシラン、ウレ イドシラン、ビニルシラン等の各種シラン系化合物、チ タン系化合物、アルミニウムキレート類、アルミニウム /ジルコニウム系化合物等の公知のカップリング剤を添 加することができる。これらを例示すると、ビニルトリ 10 クロロシラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリ ス (β-メトキシエトキシ) シラン、y-メタクリロキ シプロピルトリメトキシシラン、y-メタクリロキシプ ロピルトリエトキシシラン、y-アクリロキシプロピル トリメトキシシラン、β-(3,4-エポキシシクロへ キシル) エチルトリメトキシシラン、 y - グリシドキシ プロピルトリメトキシシラン、 y - グリシドキシプロピ ルメチルジメトキシシラン、ビニルトリアセトキシシラ ン、 y - メルカプトプロピルトリメトキシシラン、 y -アミノプロピルトリエトキシシラン、 γ-アニリノプロ ピルトリメトキシシラン、 y-アニリノプロピルメチル ジメトキシシラン、 $y - [ビス (\beta - ヒドロキシエチ$ $(N-\beta)$ アミノプロピルトリエトキシシラン、 $(N-\beta)$ (アミノエチル) - y - アミノプロピルトリメトキシシ ラン、y-(β-アミノエチル) アミノプロピルジメト キシメチルシラン、N-(トリメトキシシリルプロピ ル) エチレンジアミン、N-(ジメトキシメチルシリル イソプロピル) エチレンジアミン、メチルトリメトキシ シラン、ジメチルジメトキシシラン、メチルトリエトキ シシラン、 $N-\beta-(N-ビニルベンジルアミノエチ$ ル) - y - アミノプロピルトリメトキシシラン、y - ク ロロプロピルトリメトキシシラン、ヘキサメチルジシラ ン、ビニルトリメトキシシラン、ィーメルカプトプロピ ルメチルジメトキシシラン、y-メタクリロキシプロピ ルトリメトキシシラン、y-メタクリロキシプロピルト リエトキシシラン、ソーアクリロキシプロピルトリメト キシシラン、y-アクリロキシプロピルトリエトキシシ ラン等のシラン系カップリング剤、イソプロピルトリイ ソステアロイルチタネート、イソプロピルトリス (ジオ クチルパイロホスフェート) チタネート、イソプロピル 40 トリ(N-アミノエチル-アミノエチル)チタネート、*

(ここで、M'、M'及びM'は互いに異なる金属元素を 示し、a、b、c、d、p、q及びmは正の数、rは0又は 正の数を示す。)

【0034】上記組成式 (XIX) 中のM'、M'及びM'は 互いに異なる金属元素であれば特に制限はないが、難燃 性の観点からは、M'が第3周期の金属元素、IIA族の アルカリ土類金属元素、IVB族、IIB族、VIII族、IB 族、IIIA族及びIVA族に属する金属元素から選ばれ、

* テトラオクチルビス (ジトリデシルホスファイト) チタ ネート、テトラ(2,2-ジアリルオキシメチル-1-ブチル) ビス (ジトリデシル) ホスファイトチタネー ト、ビス(ジオクチルパイロホスフェート)オキシアセ テートチタネート、ビス(ジオクチルパイロホスフェー ト) エチレンチタネート、イソプロピルトリオクタノイ ルチタネート、イソプロピルジメタクリルイソステアロ イルチタネート、イソプロピルトリドデシルベンゼンス ルホニルチタネート、イソプロピルイソステアロイルジ アクリルチタネート、イソプロピルトリ(ジオクチルホ スフェート) チタネート、イソプロピルトリクミルフェ ニルチタネート、テトライソプロピルビス(ジオクチル ホスファイト) チタネート等のチタネート系カップリン グ剤などが挙げられ、これらの1種を単独で用いても2 種以上を組み合わせて用いてもよい。

18

【0032】上記カップリング剤の配合量は、(D)無 機充填剤に対して0.05~5重量%であることが好ま しく、0.1~2.5重量%がより好ましい。0.05 重量%未満ではフレームとの接着性が低下する傾向があ り、5重量%を超えると成形性が低下する傾向がある。 【0033】本発明のエポキシ樹脂成形材料には従来公 知の難燃剤を必要に応じて配合することができる。たと えば、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、酸化 亜鉛、錫酸亜鉛、硼酸亜鉛、酸化鉄、酸化アンチモン、 酸化モリブデン、モリブデン酸亜鉛等の金属元素を含む 無機化合物;赤リン、リン酸エステル、ホスフィンオキ サイト等のリン化合物;メラミン、メラミン誘導体、メ ラミン変性フェノール樹脂、トリアジン環を有する化合 物、シアヌル酸誘導体、イソシアヌル酸誘導体等の窒素 含有化合物;シクロホスファゼン等のリン及び窒素含有 化合物;臭素化エポキシ樹脂、臭素化フェノール樹脂等 の難燃性ハロゲン化物;ジシクロペンタジエニル鉄等の 有機金属化合物;下記組成式(XIX)で示される複合金 **属水酸化物などが挙げられる。これらの1種を単独で用** いても2種以上を組合わせて用いてもよい。また、上記 に示した難燃剤のうち、無機系のものは、エポキシ樹脂 成形材料への分散性を上げる、吸湿による分解を防ぐ、 硬化性を上げるなどの目的で有機物からなる被覆が施さ れていてもよい。

【化29】

30

 $p(M', O_b) \cdot q(M', O_d) \cdot r(M', O_d) \cdot mH_2O$ (XIX)

> M⁶がIIIB~IIB族の遷移金属元素から選ばれることが 好ましく、M¹がマグネシウム、カルシウム、アルミニ ウム、スズ、チタン、鉄、コバルト、ニッケル、銅及び 亜鉛から選ばれ、M⁴が鉄、コバルト、ニッケル、銅及 び亜鉛から選ばれることがより好ましい。流動性の観点 からは、M¹がマグネシウム、M²が亜鉛又はニッケル で、r = 0のものが好ましい。p、q及びrのモル比は 50 特に制限はないが、r=0で、p/qが1/99~1/

19

1であることが好ましい。なお、金属元素の分類は、典 型元素をA亜族、遷移元素をB亜族とする長周期型の周 期率表(出典:共立出版株式会社発行「化学大辞典4」 1987年2月15日縮刷版第30刷) に基づいて行っ

【0035】また、本発明のエポキシ樹脂成形材料に は、ICの耐湿性、高温放置特性を向上させる目的で陰 イオン交換体を必要に応じて配合することができる。陰*

 Mg_{1-x} $Alx (OH)_2 (CO_3)_{x/2} \cdot mH_2O \cdots (XX)$

(0<X≦0.5、mは正の整数)

これらの陰イオン交換体の配合量は、ハロゲンイオンな どの陰イオンを捕捉できる十分量であれば特に制限はな いが、(A) エポキシ樹脂に対して0.1~30重量% の範囲が好ましく、1~5重量%がより好ましい。

【0036】本発明のエポキシ樹脂成形材料には、必要 に応じて接着促進剤を配合することができる。特に、銅 フレームとエポキシ樹脂成形材料との接着性を向上させ るために接着促進剤の配合は有効である。接着促進剤と しては特に制限はなく、従来公知のものを用いることが できるが、例えば、イミダゾール、トリアゾール、テト ラゾール、トリアジン等及びこれらの誘導体、アントラ ニル酸、没食子酸、マロン酸、リンゴ酸、マレイン酸、 アミノフェノール、キノリン等及びこれらの誘導体、脂 肪族酸アミド化合物、ジチオカルバミン酸塩、チアジア ゾール誘導体などが挙げられ、これらを単独で用いても 2種類以上を組み合わせて用いてもよい。

【0037】本発明のエポキシ樹脂成形材料には、必要 に応じて離型剤を用いてもよい。離型剤としては、酸化 型又は非酸化型のポリオレフィンを(A)エポキシ樹脂 100重量部に対して0.01~10重量部用いること 30 が好ましく、0.1~5重量部用いることがより好まし い。0.01重量部未満では離型性が不十分となる傾向 があり、10重量部を超えると接着性が低下する傾向が ある。酸化型又は非酸化型のポリオレフィンとしては、 ヘキスト株式会社製H4やPE、PEDシリーズ等の数 平均分子量が500~10000程度の低分子量ポリエ チレンなどが挙げられる。また、これ以外の離型剤とし ては、たとえばカルナバワックス、モンタン酸エステ ル、モンタン酸、ステアリン酸等が挙げられ、これらの 1種を単独で用いても2種以上組合わせて用いてもよ い。酸化型又は非酸化型のポリオレフィンに加えてこれ ら他の離型剤を併用する場合、その配合量は(A)エポ キシ樹脂100重量部に対して0.1~10重量部が好 ましく、0.5~3重量部がより好ましい。また、その 他の添加剤として、シリコーンオイル、シリコーンゴム 粉末等の応力緩和剤、カーボンプラック、有機染料、有 機顔料、酸化チタン、鉛丹、ベンガラ等の着色剤など を、必要に応じて本発明のエポキシ樹脂成形材料に配合 することができる。

【0038】本発明のエポキシ樹脂成形材料は、各種成 50 後、本発明のエポキシ樹脂成形材料で素子を封止したB

* イオン交換体としては特に制限はなく、従来公知のもの を用いることができるが、例えば、ハイドロタルサイト 類や、マグネシウム、アルミニウム、チタン、ジルコニ ウム、ビスマスから選ばれる元素の含水酸化物等が挙げ られ、これらを単独用いても2種類以上を組み合わせて 用いてもよい。なかでも、次式(XX)で示されるハイド ロタルサイトが好ましい。

分を均一に分散混合できるのであれば、いかなる手法を

【化30】

用いても調製できるが、一般的な手法として、所定の配 合量の成分をミキサー等によって十分混合した後、ミキ シングロール、押出機等によって溶融混練した後、冷 却、粉砕する方法を挙げることができる。例えば、上述 した成分の所定量を均一に撹拌、混合し、予め70~1 40℃に加熱してあるニーダー、ロール、エクストルー ダーなどで混練、冷却し、粉砕するなどの方法で得るこ とができる。成形条件に合うような寸法及び重量でタブ レット化すると使いやすい。

【0039】本発明で得られるエポキシ樹脂成形材料に より封止した素子を備えた電子部品装置としては、リー ドフレーム、配線済みのテープキャリア、配線板、ガラ ス、シリコンウエハ等の支持部材に、半導体チップ、ト ランジスタ、ダイオード、サイリスタ等の能動素子、コ ンデンサ、抵抗体、コイル等の受動素子等の素子を搭載 し、必要な部分を本発明のエポキシ樹脂成形材料で封止 した、電子部品装置などが挙げられる。このような電子 部品装置としては、たとえば、リードフレーム上に半導 体素子を固定し、ボンディングパッド等の素子の端子部 とリード部をワイヤボンディングやバンプで接続した 後、本発明のエポキシ樹脂成形材料を用いてトランスフ ァ成形等により封止してなる、DIP (Dual Inline Pa ckage) , PLCC (Plastic Leaded Chip Carrier) , QFP (Quad Flat Package) , SOP (Small Outline Package), SOJ (Small Outline J-lead packag e) TSOP (Thin Small Outline Package) TO FP (Thin Quad Flat Package) 等の一般的な樹脂封止 型IC、テープキャリアにバンプで接続した半導体チッ プを、本発明のエポキシ樹脂成形材料で封止したTCP (Tape Carrier Package) 、配線板やガラス上に形成し た配線に、ワイヤボンディング、フリップチップボンデ ィング、はんだ等で接続した半導体チップ、トランジス タ、ダイオード、サイリスタ等の能動素子及び/又はコ ンデンサ、抵抗体、コイル等の受動素子を、本発明のエ ポキシ樹脂成形材料で封止したCOB (Chip On Boar d) モジュール、ハイブリッドIC、マルチチップモジ ュール、裏面に配線板接続用の端子を形成した有機基板 の表面に素子を搭載し、バンプまたはワイヤボンディン グにより素子と有機基板に形成された配線を接続した

G A (Ball Grid Array) , C S P (Chip Size Packag e) などが挙げられる。また、プリント回路板にも本発 明のエポキシ樹脂成形材料は有効に使用できる。

【0040】本発明のエポキシ樹脂成形材料を用いて素 子を封止する方法としては、低圧トランスファ成形法が 最も一般的であるが、インジェクション成形法、圧縮成 形法等を用いてもよい。

[0041]

【実施例】次に実施例により本発明を説明するが、本発 明の範囲はこれらの実施例に限定されるものではない。 (実施例1~10、比較例1~4) エポキシ樹脂とし て、

エポキシ樹脂1:オルトクレゾールノボラック型エポキ シ樹脂(エポキシ当量195、軟化点62℃、住友化学 工業株式会社製商品名ESCN-190)、

エポキシ樹脂2:ジシクロペンタジエン変性フェノール ノボラック型エポキシ樹脂(エポキシ当量264、軟化 点64℃、大日本インキ化学工業株式会社製商品名HP -7200)

エポキシ樹脂3:ビスフェノールA型エポキシ樹脂(エ 20 ポキシ当量468、軟化点64℃、ジャパンエポキシレ ジン株式会社製商品名E-1001)、

エポキシ樹脂4:ビフェニル骨格型エポキシ樹脂(エポ キシ当量187、融点106℃、ジャパンエポキシレジ ン株式会社製商品名YX-4000)、

エポキシ樹脂5:硫黄原子含有エポキシ樹脂(エポキシ 当量242、融点119℃、新日鐵化学株式会社製商品 名YSLV-120TE) を用意した。

【0042】硬化剤としては

硬化剤1:下記一般式 (XIV) で表され式中のn=1以 上の成分量が10重量%であるフェノールノボラック樹 脂(水酸基当量100、融点120℃、本州化学工業株 式会社製商品名ビスフェノールF)、

硬化剤2:1分子内にフェノール性水酸基を平均で2. 2個含有するジシクロペンタジエン型フェノール樹脂 (水酸基当量166、軟化点93℃、日本石油化学株式* *会社製商品名DPP-L)、

硬化剤3:下記一般式(XIV)で表され式中のn=1以 上の成分量が82重量%、nの平均値が4.0であるフ ェノールノボラック樹脂(水酸基当量106、軟化点8 0℃、荒川化学工業株式会社製商品名タマノル75 8)、

22

硬化剤4:1分子内にフェノール性水酸基を平均で3. 5個含有するフェノールアラルキル樹脂(水酸基当量1 76、軟化点70℃、三井化学株式会社製商品名ミレッ 10 クスXLC)を用意した。

【0043】硬化促進剤としてはトリフェニルホスフィ ンとpーベンゾキノンとの付加反応物(硬化促進剤 1)、カップリング剤としては、y-グリシドキシプロ ピルトリメトキシシラン(カップリング剤:日本ユニカ 一株式会社製商品名A-187)、無機充填剤として平 均粒径25.0μm、比表面積3.3m²/gの球状溶 融シリカ、難燃剤としてビスフェノールA型ブロム化エ ポキシ樹脂(エポキシ樹脂6:住友化学工業株式会社製 商品名ESB-400T、エポキシ当量375、軟化点 80℃、臭素含量48重量%)、三酸化アンチモン、そ の他の添加剤としてカルナバワックス(株式会社セラリ カNODA製)、カーボンブラック(三菱化学株式会社 製商品名MA-100)を用意した。これらをそれぞれ 表1~表2に示す重量部で配合し、混練温度80℃、混 練時間10分の条件でロール混練を行い、実施例1~1 0及び比較例1~4のエポキシ樹脂成形材料を作製し た。なお、表1、2中「多官能成分」は、分子内にフェ ノール性水酸基を平均で3個以上含有する多官能フェノ ール樹脂の、(B)硬化剤全量中の重量%を示す。

【化31】

[0044] 【表1】

(車	Œ:	<u> A</u>	I	鄁	J
					-

									(単位: 屋	重節)
項目					実力	5 69				
	1	2	3	4	5	6	7	В	9	10
エポキシ樹脂1	85	85	70	70	70	65	65	50	50	50
エポキシ樹脂2			15	15				15	15	15
エポキシ樹脂3					15					(
エポキシ樹脂4						20	i	20	20	
エポキシ樹脂5							20			20
エポキシ樹脂6	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15
硬化剤1	48	28	46	27	28	29	27	28	25	26
硬化新2		32		30	29	32	30	31	27	29
硬化剤3									5	
硬化促進剤1	3.6	3.0	3.6	3.0	3.0	3.4	3.4	3.4	3.4	3.4
三融化アンチモン	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	50	5.0	5.0	5.0
カルナバワックス	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0
カーポンブラック	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2,0	2.0	2.0	2.0	2.0
カップリング者。	4.5	4.5	4.5	4.5	4.5	4.5	4,5	4.5	4.5	4.5
溶融シリカ	918	985	903	871	953	991	973	976	969	959
溶融沙肋含量(wt%)	85	85	85	85	85	85	85	85	85	85
多官能成分(%)	0	0	0	0	0	0	<u> </u>	0	8	0

【0045】 【表2】

単位:常量部)

			(+ 14 · 4	- MAN H / /
項目		比(支例	
	1	2	3	4
エポキシ樹脂1	85	65	85	
エポキシ樹脂4				85
エポキシ樹脂8	15	15	15	15
硬化剂1			41	
硅化射3	49		7	52
硬化剤4		82		
硬化促進剂1	20	2.0	3.0	3.4
三酸化アンチモン	5.0	5.0	5.0	5.0
カルナパワックス	2.0	2.0	2.0	2.0
カーボンブラック	2.0	2.0	2.0	2.0
カップリング報	4.5	4.5	4.5	4.5
溶融シリカ	918	1102	916	844
溶融シ油含量(wt%)	85	85	85	85
多官能成分(%)	100	100	15	100

23

【0046】作製した実施例、比較例のエポキシ樹脂成形材料を、次の各試験により評価した。なお、エポキシ樹脂成形材料の成形は、トランスファ成形機により、金型温度180℃、成形圧力6.9MPa、硬化時間90秒の条件で行った。また、後硬化は180℃で5時間行った。評価結果を表2に示す。

(1)スパイラルフロー(流動性の指標)

EMMⅠ-1-66に準じたスパイラルフロー測定用金型を用いて、エポキシ樹脂成形材料を上記条件で成形し、流動距離 (cm) を求めた。

(2)円板フロー(流動性の指標)

200mm (W) × 200mm (D) × 25mm (H) の上型と200mm (W) × 200mm (D) × 15mm (H) の下型を有する円板フロー測定用平板金型を用いて、秤量した試料 (エポキシ樹脂成形材料) 5gを180℃に加熱した下型の中心部にのせ、5秒後に、18300℃に加熱した上型を閉じて、荷重78N、硬化時間90秒の条件で圧縮成形し、ノギスで成形品の長径 (mm) 及び短径 (mm) を測定して、その平均値 (mm) を円板フローとした。

(3) 熱時硬度

エポキシ樹脂成形材料を上記成形条件で直径50mm×厚さ3mmの円板に成形し、成形後直ちにショアD型硬度計を用いて測定した。

(4)吸水率

上記(3)で成形した円板を上記条件で後硬化し、85 40 ℃/85%RHの条件下で168時間放置し、放置前後

の重量変化を測定して吸水率を評価した。

(5) チップシフト量

LOC (Lead On Chip) 構造の42アロイリードフレーム上に8.6 mm×15.0 mm×0.28 mm厚のシリコーンチップを搭載した、リードフレーム上面からパッケージ上面までの厚みが0.22 mm、チップ下面からパッケージ下面までの厚みが0.28 mmのTSOP(Thin Small Outline Package)を、上記条件で成形して作製し、その破断面観察からチップシフト量を求め

10 た。チップシフトについてはシフト量 20μ m未満を良好、 20μ m以上を不良とした。

(6) ボイド発生量

上記(5)と同じTSOPを用いて、ソフトX線測定装置(ソフテック社製PRO-TEST100型)により、電圧100 k V、電流1. 5 mA の条件で透視観察を行い、直径0. 1 mm 以上のボイドの発生の有無を観察し、ボイド発生パッケージ数/全パッケージ数で評価した。

(7)ワイヤースウィープ量

(8) 耐リフロークラック性

42アロイリードフレーム上に8×10×0.4 mm厚のシリコーンチップを搭載した外形寸法20×14×2.0 mm厚の80pQFPパッケージをエポキシ樹脂成形材料を用いて上記条件で成形し、得られたパッケージを85 $^{\circ}$ C/85 $^{\circ}$ RHで所定時間吸湿処理を行った後、IRリフロー装置により245 $^{\circ}$ C/15秒の条件でリフロー処理を行ってクラックの有無を確認し、クラック発生パッケージ数/全パッケージ数で評価した。

[0047]

【表3】

項目		実 施 例												
		1	2	3	4	5	6	7	8_	8	10			
スパー(jルブロー(am)		127	109	122	107	99	115	114	113	111	112			
円板70-(mm)		95	86	92	85	BD	89	90	87	86	88			
熱時硬度		60	81	81	81	80	C3	80	80	81	80			
吸水率(wt%)		0.21	0.19	0.19	0.18	0.20	0.19	0.19	0.18	0.19	0.18			
チップシフト量		良好	良好	良好	且好	良好	良好	良好	良好	良好	良好			
ポイド発生量+		0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10			
ワイヤースウィーブ(%)		1.8	2.1	1.9	2.1	2.8	1.9	1.9	2.0	2.0	2.0			
	72h	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10			
耐リフロー性*	96h	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10			
	120h	1/10	0/10	1/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10			

[0048]

【表4】

項目			比单	交易	
		1	2	3	4
スパイラルフロー(cm)		76	84	104	122
円板70-(mm)		62	71	82	91
熱時硬度		85	83	79	78
吸水平(wt%)		0.24	0.20	0.22	0.22
チップシフト量		不良	不良	不良	良好
ポイド発生量+		10/10	7/10	1/10	0/10
ワイヤースウィーブ(%)		9.4	8,5	4.1	3.2
	72h	10/10	0/10	0/10	0/10
耐リフロ一性+	96h	10/10	6/10	0/10	3/10
	12Qh	10/10	10/10	7/10	10/10

+ 不良數/母數

【0049】表3及び4に見られるように、本発明に規定している(B)硬化剤を用いている実施例1~10 は、スパイラルフロー及び円板フロー等の流動性に優 * *れ、チップシフトがいずれも良好であり、ボイドの発生もなく、ワイヤースウィープも小さく、耐リフロー性にも優れる。特に(B)硬化剤成分として硬化剤2を併用している実施例2及び4~10は耐リフロークラック性に優れている。これに対して、本発明に規定している(B)硬化剤を含まない比較例1~4では、実施例と比較して、チップシフト、ボイド発生量、ワイヤースウィ

ープ、耐リフロー性のいずれかに劣っている。

20 [0050]

【発明の効果】本発明のエポキシ樹脂成形材料を用いてIC、LSI等の電子部品を封止すれば、TSOPのような薄型の表面実装型パッケージにおいてもチップシフトやボイドの発生が少なく、優れたワイヤースウィープ性及び耐リフロー性を示し、信頼性の高い電子部品装置を得ることができるので、その工業的価値は大である。

【手続補正書】

【提出日】平成14年6月24日(2002.6.24)

【手続補正2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0030

【補正方法】変更

【補正内容】

【0030】本発明において用いられる(D)無機充填削は、吸湿性、線膨張係数低減、熱伝導性向上及び強度向上のためにエポキシ樹脂成形材料に配合されるものであり、例えば、溶融シリカ、結晶シリカ、アルミナ、ジルコン、珪酸カルシウム、炭酸カルシウム、チタン酸カリウム、炭化珪素、窒化アルミ、窒化ホウ素、ベリリア、ジルコニア、ジルコン、フォステライト、ステアタイト、スピネル、ムライト、チタニア等の粉体、又はこれらを球形化したビーズ、ガラス繊維などが挙げられ、これらの1種を単独で用いても2種以上を組合わせて用いてもよい。さらに、難燃効果のある無機充填剤としては水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、啜酸亜鉛、モリブデン酸亜鉛、マグネシウムと亜鉛

の複合水酸化物等の複合金属水酸化物などが挙げられ、これらの1種を単独で用いても2種以上を組合わせて用いてもよい。なかでも、線膨張係数低減の観点からは溶融シリカが、高熱伝導性の観点からはアルミナが好ましい。充填剤の形状は、成形時の流動性又は金型摩耗性の点からは球形又は球状に近い形が好ましい。(D)無機充填剤の配合量は、成形性、吸湿性、線膨張係数の低減及び強度向上の観点から、エポキシ樹脂成形材料に対して70重量%以上が好ましく、80重量%より多く95重量%以下がより好ましい。70重量%未満では耐<u>リフロー性</u>が低下する傾向があり、95重量%を超えると流動性が不足する傾向がある。

【手続補正3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0041

【補正方法】変更

【補正内容】

[0041]

【実施例】次に実施例により本発明を説明するが、本発明の範囲はこれらの実施例に限定されるものではない。

(実施例1~10、比較例1~4) エポキシ樹脂として、

エポキシ樹脂1:オルトクレゾールノボラック型エポキシ樹脂(エポキシ当量195、軟化点62℃、住友化学工業株式会社製商品名ESCN-190)、

エポキシ樹脂 2: ジシクロペンタ<u>ジエン型</u>エポキシ樹脂 (エポキシ当量 2 6 4、軟化点 6 4 $^{\circ}$ C、大日本インキ化 学工業株式会社製商品名 $^{\circ}$ HP $^{\circ}$ 7 2 0 0)、

エポキシ樹脂 3 : ビスフェノール A 型エポキシ樹脂(エポキシ当量 4 6 8、軟化点 6 4 $^{\circ}$ C、ジャパンエポキシレジン株式会社製商品名 E $^{-}$ 1 0 0 1)、

エポキシ樹脂 4: ビフェニル骨格型エポキシ樹脂(エポキシ当量 187、融点 106 \mathbb{C} 、ジャパンエポキシレジン株式会社製商品名 YX-4000)、

エポキシ樹脂 5:硫黄原子含有エポキシ樹脂 (エポキシ 当量242、融点119℃、新日鐵化学株式会社製商品 名YSLV-120TE) を用意した。

【手続補正4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0046

【補正方法】変更

【補正内容】

【0046】作製した実施例、比較例のエポキシ樹脂成形材料を、次の各試験により評価した。なお、エポキシ樹脂成形材料の成形は、トランスファ成形機により、金型温度180℃、成形圧力6.9MPa、硬化時間90秒の条件で行った。また、後硬化は180℃で5時間行った。評価結果を表2に示す。

(1)スパイラルフロー(流動性の指標)

EMMI-1-66に準じたスパイラルフロー測定用金型を用いて、エポキシ樹脂成形材料を上記条件で成形し、流動距離(cm)を求めた。

(2) 円板フロー (流動性の指標)

200mm (W) × 200mm (D) × 25mm (H) の上型と200mm (W) × 200mm (D) × 15mm (H) の下型を有する円板フロー測定用平板金型を用いて、秤量した試料(エポキシ樹脂成形材料)5gを180℃に加熱した下型の中心部にのせ、5秒後に、180℃に加熱した上型を閉じて、荷重78N、硬化時間90秒の条件で圧縮成形し、ノギスで成形品の長径(mm)及び短径(mm)を測定して、その平均値(mm)を円板フローとした。

(3) 熱時硬度

エポキシ樹脂成形材料を上記成形条件で直径50mm× 厚さ3mmの円板に成形し、成形後直ちにショアD型硬 度計を用いて測定した。

(4) 吸水率

上記(3)で成形した円板を上記条件で後硬化し、85 ℃/85%RHの条件下で168時間放置し、放置前後 の重量変化を測定して吸水率を評価した。

(5) チップシフト量

LOC (Lead On Chip) 構造の 42 アロイリードフレーム上に 8.6 mm×15.0 mm×0.28 mm厚のシリコーンチップを搭載した、リードフレーム上面からパッケージ上面までの厚みが 0.22 mm、チップ下面からパッケージ下面までの厚みが 0.28 mmの TSOP (Thin Small Outline Package) を、上記条件で成形して作製し、その破断面観察からチップシフト量を求めた。チップシフトについてはシフト量 20μ m未満を良好、 20μ m以上を不良とした。

(6) ボイド発生量

上記(5)と同じTSOPを用いて、ソフトX線測定装置(ソフテック社製PRO-TEST100型)により、電圧100 k V、電流1. 5 mA の条件で透視観察を行い、直径0. 1 mm 以上のボイドの発生の有無を観察し、ボイド発生パッケージ数/全パッケージ数で評価した。

(7) ワイヤースウィープ量

録リードフレーム上に 5. 8×5 . 8×0 . 3 mm厚のシリコーンチップを搭載した外形寸法 $2.4 \times 2.4 \times 1$. 4 mm厚の 2.1.6 p Q F P R アクージ (金線: $2.7 \text{ }\mu$ m径、 4.1 mm長、 $8.0 \text{ }\mu$ m R ッドピッチ)をエポキシ 樹脂成形材料を用いて上記条件で成形して作製した。得られたパッケージをソフト X 線測定装置(ソフテック社製 P R O - T E S T 1.00 型)により、電圧 1.00 k V、電流 1.5 m M の条件で透視観察を行い、ワイヤースウィープ量(流れ量)/(金線長)(単位%)を測定してパッケージ数 $1.0 \text{ }\theta$ の 平均値で評価した。

(8) 耐リフロー性

42アロイリードフレーム上に8×10×0.4 mm厚のシリコーンチップを搭載した外形寸法20×14×2.0 mm厚の80pQFPパッケージをエポキシ樹脂成形材料を用いて上記条件で成形し、得られたパッケージを85 $^{\circ}$ C/85 $^{\circ}$ RHで所定時間吸湿処理を行った後、IRリフロー装置により245 $^{\circ}$ C/15 $^{\circ}$ 秒の条件でリフロー処理を行ってクラックの有無を確認し、クラック発生パッケージ数/全パッケージ数で評価した。

【手続補正5】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0049

【補正方法】変更

【補正内容】

【0049】表3及び4に見られるように、本発明に規定している(B)硬化剤を用いている実施例 $1\sim10$ は、スパイラルフロー及び円板フロー等の流動性に優れ、チップシフトがいずれも良好であり、ボイドの発生もなく、ワイヤースウィープも小さく、耐リフロー性にも優れる。特に(B)硬化剤成分として硬化剤2を併用している実施例2及び $4\sim10$ は耐<u>リフロー性</u>に優れている。これに対して、本発明に規定している(B)硬化

剤を含まない比較例 1 ~ 4 では、実施例と比較して、チ * フロー性のいずれかに劣っている。 ップシフト、ボイド発生量、ワイヤースウィープ、耐リ*

フロントページの続き

(72)発明者 片寄 光雄 茨城県つくば市和台48 日立化成工業株式 会社総合研究所内 F ターム(参考) 4J036 AD08 AD11 AE07 AF06 FA01 FB06 JA07 4M109 AA01 EA03 EB02 EB03 EB04 EB12